

**Simultane Wechselwirkung von Hyperschall
und magnetischem Wechselfeld mit
 Fe^{2+} -Ionen in MgO
(Phonon-Photon-Übergänge)**

Inaugural-Dissertation
zur Erlangung der Doktorwürde
des Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Burkhard Christmann
aus Berlin
1977

**Simultane Wechselwirkung von Hyperschall
und magnetischem Wechselfeld mit
 Fe^{2+} -Ionen in MgO
(Phonon-Photon-Übergänge)**



Inaugural-Dissertation
zur Erlangung der Doktorwürde
des Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Burkhard Christmann
aus Berlin
1977



1. Referent: Prof. Dr. S. Wilking

2. Referent: Prof. Dr. H. Stenschke

Tag der mündlichen Prüfung: 30.9.1977

Inhalt

	Seite
1 Einleitung	1
2 Die simultane Wechselwirkung und das Problem der Schallabsorptionsmessung in der APR	3
3 Hamiltonoperator	6
4 Übergangswahrscheinlichkeit bei simultaner Wechselwirkung	8
5 Proben	13
6 Hyperschallspektrometer	14
7 Hochfrequenzspektrometer	16
7.1 Apparatur	16
7.2 Größe des magnetischen Wechselfeldes	19
8 Berechnung der Ausgangssignale der Spektrometer bei simultaner Wechselwirkung	23
8.1 Werte der Besselfunktionen für die Daten des Experimentes	23
8.2 Schallabschwächungskoeffizient	24
8.3 Hochfrequenzsignal	25
9 Ergebnisse der Messungen	27
9.1 Vorbemerkung	27
9.2 Abhängigkeit der Signale von Stärke und Richtung des statischen Magnetfeldes	27
9.3 Zeitabhängigkeit der Signale	33
9.4 Energie des Schallimpulses	37
9.5 Abhängigkeit der Grunddämpfung von der Energiedichte des Schallfeldes	38
9.6 Entwicklung der Besetzungsdifferenz nach Sättigung des Überganges	38
9.7 Bestimmung des Betrages der Spin-Phonon- Kopplungskonstanten G_{11}	41

	Seite
10 Daten zum Experiment	45
11 Anwendungsmöglichkeiten der simultanen Wechselwirkung	46
12 Anhang	48
12.1 Bestimmung kleiner Änderungen der Güte des Hochfrequenzkreises	48
12.2 Frequenzabhängigkeit der Reflexion des Hochfrequenzkreises	52
13 Literatur	55
Zusammenfassung	58

1 Einleitung

Die Methode der Akustischen Paramagnetischen Resonanz (APR) eignet sich zur Untersuchung der Wechselwirkung zwischen paramagnetischen Zentren und ihrem Wirtsgitter und ist mit der Paramagnetischen Elektronenresonanz (EPR) verwandt. Sie arbeitet wie die EPR mit Übergängen zwischen den energetisch niedrigsten Zeemanniveaus paramagnetischer Ionen, die jedoch im Gegensatz zur EPR nicht durch magnetische Wechselfelder, sondern durch Schallfelder mit Frequenzen in der Größenordnung von 10^{10} Hz (Hyperschall) induziert werden. Durch den anderen Wechselwirkungstyp bedingt, kann die APR die Aussagen der EPR über die paramagnetischen Zentren und ihrer Umgebung ergänzen. Ein wichtiger Punkt in diesem Zusammenhang ist, daß für die akustisch induzierten Übergänge weniger strenge Auswahlregeln gelten als für die magnetischen.

Die erstmals in dieser Arbeit untersuchte simultane Wechselwirkung von paramagnetischen Zentren mit einem Hyperschallfeld und einem magnetischen Wechselfeld mit einer Frequenz von ca. 10^8 Hz ist der APR zuzuordnen. Die auftretenden Phonon-Photon-Übergänge gehorchen den gleichen Auswahlregeln wie die Einphononübergänge in der APR, und es wurde im Experiment eine in der APR übliche Schallfrequenz verwendet.

Neben der Untersuchung der simultanen Wechselwirkung (siehe Abschnitte 8, 9.2, 9.3) hatte die Arbeit eine methodische Erweiterung der APR zum Ziel: Die in der APR übliche Bestimmung der Schallintensität über den piezoelektrischen Effekt reagiert empfindlich auf die Phasenverteilung des Schallfeldes über die Oberfläche der Transducer. Sie wird deshalb meist durch Fehler in der Geometrie und der Kristallstruktur der Probe, die diese Verteilung beeinflussen, gestört (siehe Abschnitt 2). Die Mehrquantenprozesse sind unabhängig von dieser Phasenverteilung. Mit Hilfe der simultanen Wechselwirkung kann daher der Schallnachweis verbessert werden, wenn die Absorption der elektromagnetischen Energie gemessen wird (siehe Abschnitte 9.2, 9.4, 9.5).

Die im Vergleich zu Einquantenprozessen kleinere Wahrscheinlichkeit der Mehrquantenprozesse beschränkt die Einsatzmöglichkeit der Methode, sie kann aber auch von Vorteil sein. So ist bei dem in dieser Arbeit untersuchten System $\text{Fe}^{2+}:\text{MgO}$ die Kopplung zwischen Gitter und paramagnetischem Zentrum so stark, daß bei den üblichen in der APR verwendeten Schallimpulsenergien bei Resonanz für $|\Delta M| = 2$ -Einquantenübergänge entweder der Schallimpuls absorbiert oder der Übergang vollständig gesättigt wird (M:magnetische Quantenzahl). Mit Hilfe des Mehrquantenprozesses kann z.B. die herabgesetzte Übergangswahrscheinlichkeit gemessen und daraus der Betrag des Matrixelementes bestimmt (siehe Abschnitt 9.7) oder die zeitliche Entwicklung der Besetzungsdifferenz nach einer Sättigung des Überganges untersucht werden (siehe Abschnitt 9.6).

Eine Diskussion weiterer Experimente, bei denen durch die Ausnutzung der simultanen Wechselwirkung Vorteile zu erwarten sind, erfolgt im Abschnitt 11.

2 Die simultane Wechselwirkung und das Problem der Schallabsorptionsmessung in der APR

Das übliche experimentelle Verfahren der APR ist die Messung der Dämpfung von Schallimpulsen beim Durchlauf durch einen mit paramagnetischen Zentren dotierten diamagnetischen Kristall in Abhängigkeit von einem statischen Magnetfeld. Der kohärente Schallimpuls wird durch Einwirkung eines elektrischen Wechselfeldes auf die Oberfläche piezoelektrischer Kristalle oder Schichten (Transducer) erzeugt und meist - nach dem Durchlauf einschließlich einer Reflexion an einer zur Transducer-Oberfläche parallelen Fläche - durch Rekonversion im gleichen Transducer nachgewiesen (Puls-Echo-Verfahren). Dieser Nachweis ist empfindlich auf die Phasenverteilung des Schallfeldes an der Oberfläche des Transducers. Er wird deshalb bei den kleinen Wellenlängen des Schalls ($0,5 \mu\text{m}$) u.a. durch kaum vermeidbare Weglängenunterschiede für verschiedene Bereiche des Schallimpulses praktisch immer gestört ¹⁾⁻⁵⁾. Die Störungen bewirken stets eine Verkleinerung der Echohöhe. Ihre wichtigsten Ursachen sind: Nichtparallelität der Endflächen und Verspannungen der Kristalle.

Verschiedene Wege wurden beschritten, um den Nachweis über den piezoelektrischen Effekt zu ersetzen:

Jacobsen, Shiren und Tucker ⁶⁾ wiesen in der ersten experimentellen Arbeit auf dem Gebiet der APR 1959 die Sättigung der paramagnetischen Resonanz durch Hyperschall mit Hilfe der EPR nach. Diese Methode wurde auch u.a. von Lewis und Stoneham für umfangreiche Messungen an den Systemen $\text{Fe}^{2+}:\text{MgO}$ und $\text{Ni}^{2+}:\text{MgO}$ ⁷⁾ eingesetzt. Sie ist vorwiegend auf die Untersuchung von Übergängen beschränkt, die im Rahmen der EPR als erlaubt bezeichnet werden.

Andrews und Strandberg ⁸⁾ setzten zur Bestimmung der Schallintensität supraleitende Bolometer ein und verloren damit u.a. die Vorteile eines frequenzselektiven Nachweises.

Shiren führte 1961 den Zweiquantendetektor als Meßmethode in die APR ein ⁹⁾. In Fe^{2+} -dotierten MgO -Kristallen strahlte

er zusätzlich zum Schallfeld ein Mikrowellenfeld ein und zeigte, daß Phonon-Photon-Übergänge zwischen den beiden äußeren Niveaus (magnetische Quantenzahlen $M = -1$ und $M = +1$) des Dreiniveau-Systems durch Absorption von Energie aus dem Mikrowellenfeld nachweisbar sind. Über Theorie und Anwendung des Zweiquantendetektors erschienen mehrere Veröffentlichungen ¹⁰⁾⁻¹⁶⁾.

Die in dieser Arbeit vorgestellte neue Methode beruht ebenfalls auf einer simultanen Wechselwirkung eines Schallfeldes und eines elektromagnetischen Feldes mit paramagnetischen Zentren. Sie unterscheidet sich jedoch wesentlich von der von Shiren. Einige wichtige Unterschiede sollen an den auch in dieser Arbeit untersuchten $|\Delta M| = 2$ -Übergängen zwischen Zeemanniveaus von Fe^{2+} in MgO erläutert werden (s. Abb. 2.1).

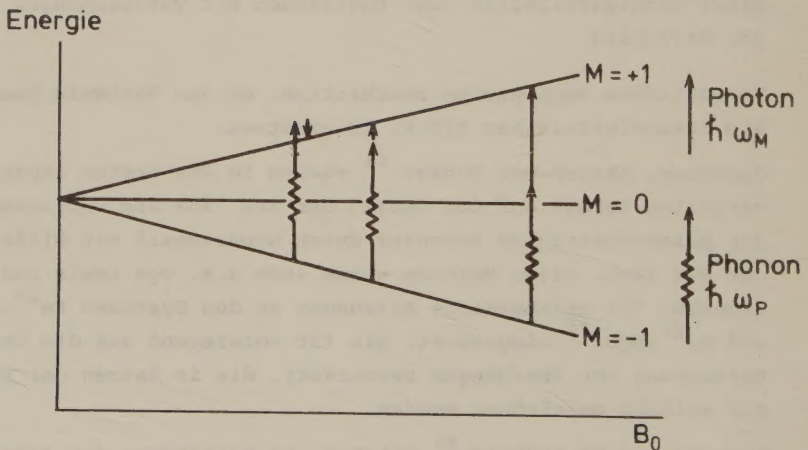


Abb. 2.1 Aufspaltung des dreifach entarteten Grundniveaus von Fe^{2+} im MgO in einem statischen Magnetfeld B_0 . Eingetragen sind Phonon-Photon-Prozesse für $\omega_M \approx \omega_P$ und $\omega_M \ll \omega_P$.

Bei der Anordnung von Shiren besitzen Schall- und Mikrowellenfeld ähnliche Kreisfrequenzen ω_p und ω_M . Die Zentren tauschen mit beiden Feldern Drehimpuls aus. Entsprechend enthält der Ausdruck für die Übergangswahrscheinlichkeit in erster nichtverschwindender Näherung der zeitabhängigen Störungstheorie die Matrixelemente für die akustisch und für die magnetisch induzierten $|\Delta M| = 1$ -Übergänge. Das mittlere Niveau des Dreiniveau-Systems der Zentren geht als Zwischenniveau in die Störungsrechnung ein, und es sind daher für Energieabsorption durch den Zweiquantenprozeß die Linienbreiten der $|\Delta M| = 1$ - und der $|\Delta M| = 2$ -Übergänge von Bedeutung.

Im Experiment, über das in dieser Arbeit berichtet wird, war die Kreisfrequenz des elektromagnetischen Feldes klein gegen die des Schallfeldes, wenn auch noch deutlich größer als die homogene Linienbreite. Austausch von Drehimpuls erfolgt bei Mehrquantenprozessen nur mit dem Schallfeld, und der Ausdruck für die Übergangswahrscheinlichkeit enthält das Matrixelement der akustisch induzierten $|\Delta M| = 2$ -Übergänge.

Anders als beim Zweiquantendetektor von Shiren hat das $M = 0$ -Niveau keinen Einfluß auf die Wahrscheinlichkeit der Prozesse, so daß für die Energieaufnahme der paramagnetischen Zentren nur die Linienbreite der $|\Delta M| = 2$ -Übergänge und nicht die wesentlich größere der $|\Delta M| = 1$ -Übergänge eine Rolle spielt. Die Unabhängigkeit von der Lage der übrigen Teilchenniveaus erlaubt prinzipiell die Anwendung der hier vorgestellten Methode zur Untersuchung aller Übergänge. Ihre Einsatzmöglichkeit wird jedoch durch die kleinere Wahrscheinlichkeit von Mehrquantenprozessen gegenüber Einquantenprozessen beschränkt.

3 Hamiltonoperator

Im Zusammenhang mit experimentellen Untersuchungen im Bereich der APR werden die paramagnetischen Zentren meist durch einen effektiven Spin $\vec{S}$ beschrieben und der Spin-Hamiltonoperator

$$H_S = \beta \vec{B}_O \vec{g} \vec{S} + \vec{S} \vec{D} \vec{S} + \beta \vec{B}_O \vec{h} \vec{S} + \vec{S} \vec{d} \vec{S} \quad (3.1)$$

eingeführt (siehe z.B. Tucker, Ramton ¹⁷⁾). β ist das Bohrsche Magneton. Der 1. und der 2. Term beschreiben die Aufspaltung der Niveaus durch das äußere Magnetfeld $\vec{B}_O$ und das elektrische Kristallfeld, die beiden übrigen den Einfluß des Schallfeldes. Die Komponenten der Tensoren $\vec{g}, \vec{D}, \vec{h}$ und $\vec{d}$ sind experimentell zu bestimmende Parameter, ihr Zusammenhang mit Größen des vollständigen Hamiltonoperators ist theoretisch abzuleiten.

Den Fe^{2+} -Ionen in MgO-Kristallen ist ein effektiver Spin mit der Quantenzahl $S = 1$ zuzuordnen. Sie sitzen an Plätzen kubischer Symmetrie, so daß der $\vec{g}$ -Tensor in Gleichung (3.1) durch einen Skalar g ersetzt werden kann und das Glied $\vec{S} \vec{D} \vec{S}$ in idealen Kristallen verschwinden würde. In realen Kristallen ist jedoch die kubische Symmetrie durch statistisch verteilte Verspannungen über mikroskopische Bereiche gestört. Sie verschieben die Niveaus $M = \pm 1$ gegenüber dem Niveau $M = 0$ und bewirken eine starke inhomogene Verbreiterung der Resonanzlinien und eine Asymmetrie der $|\Delta M| = 2$ -Linie ¹⁸⁾. Für Ionen der Eisengruppe überwiegt der Quadrupolterm $\vec{S} \vec{d} \vec{S}$ in Gleichung (3.1) gegenüber dem Dipolterm $\beta \vec{B}_O \vec{h} \vec{S}$ ¹⁹⁾; bei $|\Delta M| = 2$ -Übergängen ist ohnehin nur der Quadrupolterm von Bedeutung.

Das zusätzlich zum Schallfeld eingestrahlte magnetische Wechselfeld $\vec{B}_M$ kann aufgeteilt werden in eine zu $\vec{B}_O$ kollinare Komponente $\vec{B}_{M_{||}}$ mit $B_{M_{||}} = B_M \cos \alpha$ und eine zu $\vec{B}_O$ senkrechte Komponente $\vec{B}_{M_{\perp}}$ mit $B_{M_{\perp}} = B_M \sin \alpha$, wobei α der Winkel zwischen den Magnetfeldern ist. Die senkrechte Komponente ergab bei der im Experiment gewählten Bedingung

$\omega_M \ll \omega_P$ keinen meßbaren Beitrag zu den untersuchten $|\Delta M| = 2$ -Übergängen; es wird daher für die weiteren Betrachtungen als Hamiltonoperator

$$H_S = \beta g (\vec{B}_O + \vec{B}_{M_{\parallel}} \cos \omega_M t) \vec{S} + \vec{S} \vec{d} \vec{S} \quad (3.2)$$

angesetzt. Die Wirkung der kollinaren Komponente kann als Frequenzmodulation der Energieeigenwerte interpretiert werden.

4 Übergangswahrscheinlichkeit bei simultaner Wechselwirkung

Die Betrachtung in diesem Kapitel beschränkt sich auf die hier experimentell untersuchten $|\Delta M| = 2$ -Übergänge der Fe^{2+} -Ionen in MgO .

Die Diracsche Störungsrechnung liefert für die Wahrscheinlichkeit P eines Teilchens, durch Wechselwirkung mit Strahlungsfeldern in der Zeit t vom Zustand $|-1\rangle$ in den Zustand $|+1\rangle$ überzugehen, in 1. Näherung den Ausdruck

$$P = |\langle +1 | \tilde{S} | -1 \rangle|^2$$

mit

$$\langle +1 | \tilde{S} | -1 \rangle = \frac{1}{i\hbar} \int_0^t \langle +1 | e^{-i\int_0^{t'} H_D dt''} V e^{i\int_0^{t'} H_D dt''} | -1 \rangle dt' \quad (4.1)$$

Der Hamiltonoperator H_S wird hier anders als im allgemeinen üblich aufgeteilt *)

$$H_D = \beta g (\vec{B}_O + \vec{B}_{M_n} \cos \omega_M t) \vec{S} \quad (4.2)$$

$$V = \vec{S} \vec{d} \vec{S} \quad (4.3)$$

Aus Gleichung (4.2) folgt mit dem gyromagnetischen Verhältnis $\gamma = -g\beta/\hbar < 0$

$$H_D |M\rangle = -M\gamma\hbar (B_O + B_M \cos \alpha \cos \omega_M t) |M\rangle \quad (4.4)$$

Der Tensor $\vec{d}$ ist in linearer Näherung über den Spin-Phonon-Kopplungstensor $\vec{G}$ mit dem Straintensor $\vec{\epsilon}$ verknüpft. Die Zusammenhänge zwischen den Komponenten lauten in Voigt-Notierung

$$d_i = \sum_{j=1}^6 G_{ij} \epsilon_{ij} \quad (4.5)$$

*) Die Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeit mit explizit zeitabhängigem H_D lehnt sich an eine Darstellung von Steinbacher ²⁰⁾ an, die von Wilking angeregt wurde.

Das Kristallfeld in MgO-Kristallen hat am Ort der Fe^{2+} -Ionen oktaedrische Geometrie ²¹⁾. Es existieren daher nur zwei unabhängig voneinander meßbare Spin-Phonon-Kopplungskonstanten G_{11} und G_{44} ¹⁹⁾. Werden die betrachteten Übergänge durch longitudinalen Schall mit der Strain-Amplitude ϵ_0 induziert, der sich längs der [100]-Richtung des Kristalls ausbreitet, so gilt nach Dobrov ¹⁹⁾

$$\langle +1 | \vec{S} \vec{d} \vec{S} | -1 \rangle = V_P \cos \varphi_P t$$

mit

$$V_P = 0,75 G_{11} \epsilon_0 \sin^2 \vartheta \quad (4.6)$$

wobei ϑ der Winkel zwischen der [100]-Richtung und dem statischen Magnetfeld $\vec{B}_0$ ist.

Die Beschreibung des Phononfeldes durch ein klassisches Strainfeld stellt im Bereich der APR eine gute Näherung dar, da bei den verwendeten Schallintensitäten die Phononmoden hoch besetzt sind.

Die Strainamplitude ist über die Beziehung

$$\epsilon_0^2 = \frac{2\sigma_P}{\rho v_L^2} \quad (4.7)$$

mit der Dichte ρ , der longitudinalen Schallgeschwindigkeit v_L und der Energiedichte σ_P des Schallfeldes verknüpft, so daß aus Gleichung (4.6) folgt

$$V_P^2 = 2 \frac{(0,75 G_{11} \sin^2 \vartheta)^2}{\rho v_L^2} \sigma_P \quad (4.8)$$

Aus den Gleichungen (4.1), (4.4) und (4.6) ergibt sich die Beziehung

$$\begin{aligned} \langle +1 | S | -1 \rangle &= \frac{1}{i\hbar} \int_0^t e^{-i(2\gamma B_0 t' + 2\gamma B_M \cos \alpha \frac{\sin \omega_M t'}{\omega_M})} \\ &\cdot \frac{1}{2} (e^{+i\omega_P t'} + e^{-i\omega_P t'}) V_P dt' \end{aligned} \quad (4.9)$$

Das Glied mit der zeitabhängigen Winkelfunktion im Exponenten läßt sich entwickeln

$$e^{i2x \sin \omega_M t} = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_k(2x) e^{ik\omega_M t} \quad (4.10)$$

mit

$$x = - \frac{\gamma_B M}{\omega_M} \cos \alpha$$

$J_k(2x)$ sind die Besselfunktionen von ganzzahligen Indizes k . Für sie gilt:

$$J_k(2x) = \begin{cases} x^k \sum_{\mu=0}^{\infty} \frac{(-x^2)^\mu}{\mu! (k+\mu)!} & \text{für } k \geq 0 \\ (-1)^{|k|} J_{|k|}(2x) & \text{für } k < 0 \end{cases} \quad (4.11)$$

Durch substanzinnere Wechselwirkung ist der Übergang sowohl homogen wie auch inhomogen verbreitert. Die homogene Verbreiterung soll durch die normierte Linienform $g_H(\omega_S + k\omega_M - \omega_P)$ beschrieben werden, die bei $\omega_S = -k\omega_M + \omega_P$ ihr Maximum annimmt. Statistisch verteilte innere Verspannungen des Kristalls ergeben eine lokale Variation der Kreisfrequenz ω_S und führen zur inhomogenen Verbreiterung der Linie. Sofern ω_M groß gegen die Breite der homogenen Linienformfunktion ist, ergibt sich für eine Gruppe von Spins mit gleichem ω_S die Übergangswahrscheinlichkeit

$$P_H = \sum_k P_{Hk}$$

mit

$$P_{Hk} = \frac{\pi}{2\hbar^2} g_H(\omega_S + k\omega_M - \omega_P) J_k^2(2x) v_P^2 t \quad (4.12)$$

Die inhomogene Verbreiterung der Resonanzlinie ist für die untersuchten Übergänge etwa um zwei Zehnerpotenzen größer als die homogene. Sie soll durch die ebenfalls normierten Funktionen $g_{Ik}(\omega_B + k\omega_M - \omega_P)$ mit $\omega_B = -2\gamma_I B_O$ beschrieben werden. Die Konstante γ_I wird so gewählt, daß die Funktionen bei $\omega_B + k\omega_M - \omega_P = 0$ ihr Maximum annehmen. Für $k\omega_M \ll \omega_P$ kann die Form der inhomogenen Linie als unabhängig von k betrachtet und

$$g_{Ik}(\omega_B + k\omega_M - \omega_P) = g_I(\omega_B + h\omega_M - \omega_P) \quad (4.13)$$

gesetzt werden. Gemittelt über alle paramagnetischen Zentren ist die Übergangswahrscheinlichkeit

$$P_I = \sum_k P_{Ik}$$

mit

$$P_{Ik} = \frac{\pi}{2\hbar^2} g_I (\omega_B + k\omega_M - \omega_P) J_k^2(2x) V_P^2 t \quad (4.14)$$

Im Bild der 2. Quantisierung können den Teilübergangswahrscheinlichkeiten P_{Ik} verschiedene Prozesse zugeordnet werden. Beim Übergang vom Zustand $| -1 \rangle$ zum Zustand $| +1 \rangle$ wird ein Phonon mit dem Drehimpuls $2\hbar$ und der Energie $\hbar\omega_P$ absorbiert und k Photonen mit dem Drehimpuls 0 und der Energie $\hbar\omega_M$ absorbiert ($k < 0$) oder emittiert ($k > 0$). Die Energiebilanzen für die Prozesse mit $|k| \leq 2$ sind in Abb. 4.1 skizziert.

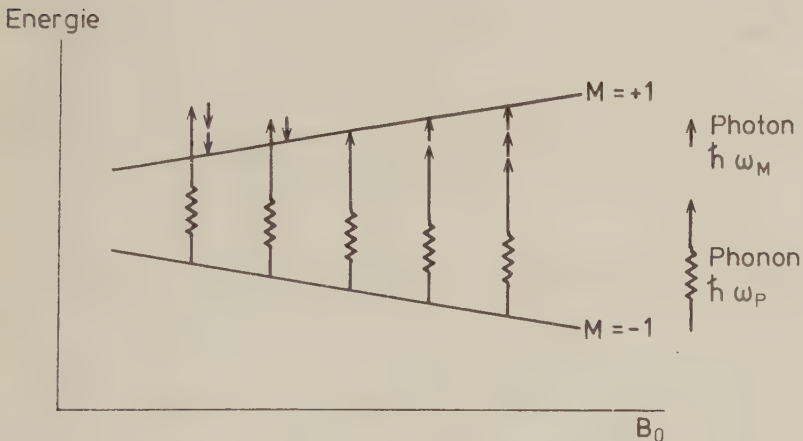


Abb. 4.1: Energieschema für die Prozesse mit $|k| \leq 2$

Die Diracsche Störungsrechnung setzt voraus, daß die Übergangswahrscheinlichkeit in der durch Relaxation beschränkten Dauer der kohärenten Wechselwirkung klein gegen eins ist. Bei Erfüllung dieser Bedingung ergibt sich eine exponentielle Abnahme der relativen spektralen Besetzungsdifferenz mit der Wechselwirkungszeit, sofern der Einfluß anderer die Differenz ändernde Prozesse vernachlässigt

werden kann. Lewis und Stoneham ⁷⁾ haben an einem mit 200 ppm Fe^{2+} dotierten Kristall eine homogene Linienbreite von 10 MHz gemessen. Setzt man voraus, daß ein ähnlicher Wert auch für die in dieser Arbeit verwendeten Kristalle gilt, so war in den Fällen, in denen die gemessene Energieabsorption quantitativ ausgewertet wurde, die oben genannte Bedingung für die Gültigkeit der Störungsrechnung erfüllt.

5 Proben

Die Proben bestehen aus 15 mm langen zylindrischen MgO-Kristallen mit einem Durchmesser von 3 mm. Die Stabachse liegt mit einer Genauigkeit von einem Grad parallel zur [100]-Kristallrichtung. Der Keilwinkel zwischen den Stirnflächen ist kleiner als zwei Bogensekunden, die Rauigkeit der Oberfläche liegt bei 0,05 μm .

Magnesiumoxyd ist ein diamagnetisches Material großer Härte und bildet ein kubisch-raumzentriertes Gitter. Die longitudinale Schallgeschwindigkeit beträgt $8,94 \cdot 10^3$ m/s, die transversale $6,42 \cdot 10^3$ m/s.

Die Kristalle sind mit 0,03 Gewichtsprozenten Fe^{2+} -Ionen dotiert. Der mittlere Abstand zweier Fe^{2+} -Ionen ist ca. 50 Å.

Die teilweise besetzte Elektronenschale des Fe^{2+} -Ions enthält 6 d-Elektronen. Nach der Hundschen Regel folgt daraus ein $^5\text{D}_4$ -Grundzustand für das freie Ion. Durch die Wechselwirkung zwischen den Fe^{2+} -Ionen und dem Kristallfeld ergibt sich in MgO-Kristallen ein dreifach entarteter Grundzustand. Die Aufhebung der Entartung in einem äußeren Magnetfeld kann mit Hilfe eines effektiven Spins mit der Quantenzahl 1 beschrieben werden.

Eine unter geeigneten Bedingungen aufgedampfte CdS-Schicht¹³⁾ dient als Transducer.

6 Hyperschallspektrometer

Das Hyperschallspektrometer dient zur Erzeugung und zum Nachweis von Schallimpulsen mit einer Schallfrequenz von 8,9 bis 9,5 GHz. Der Aufbau des Spektrometers ist vereinfacht in Abb. 6.2 dargestellt. Es arbeitet nach dem Puls-Echo-Verfahren: Durch Einwirken des elektrischen Feldes auf die piezoelektrische Kadmiumsulfid-Schicht (Transducer) in einem koaxialen Mikrowellenresonator wird an einer Stirnfläche des Kristalls über eine Zeit von ca. $0,5 \mu\text{s}$ ein Schallimpuls angeregt (s. Abb. 6.1). Er läuft durch den Kristall, wird an der 2. Stirnfläche wieder reflektiert und erreicht bei den verwendeten Kristallen nach ca. $3,3 \mu\text{s}$ wieder die CdS-Schicht. Dort entsteht über den inversen piezoelektrischen Effekt ein Mikrowellenimpuls (1. Echo), der nach Zwischenfrequenzbildung, Verstärkung und Demodulation mit Hilfe eines Boxcarintegrators gemessen wird. Durch wiederholte Reflexionen entstehen weitere Echos.

Nähere Einzelheiten zum Aufbau und zu den Eigenschaften des Spektrometers können der Dissertation Kern ²³⁾ entnommen werden. In drei Punkten unterscheidet sich die hier verwendete Apparatur von der dort beschriebenen:

Es wurde ein zweites Magnetron angeschlossen.

Die Klystrons sind durch einen Festkörpersoszillator ersetzt worden, dessen Ausgangsfrequenz im CW-Betrieb für die Zwischenfrequenzbildung genügend stabil ist.

Auf den Meßechoarm wurde wegen der früher erwähnten Unsicherheit der Bestimmung der Schallintensität aus der Größe des 1. Echos verzichtet.

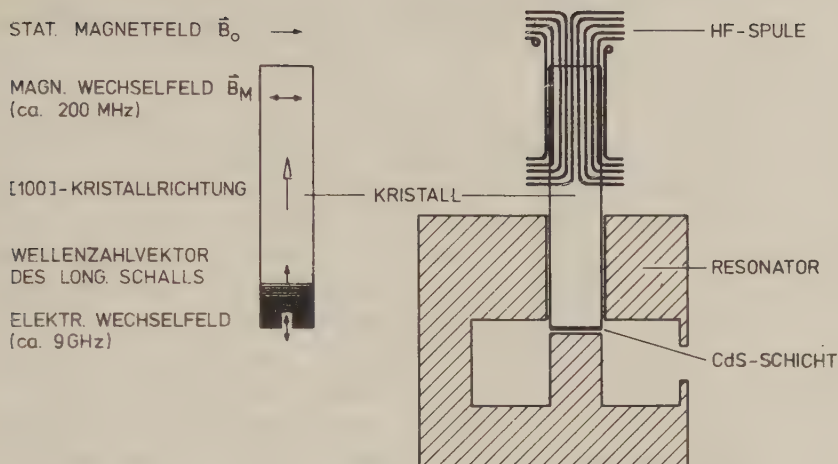


Abb. 6.1 Kristall, Mikrowellenresonator und HF-Spule

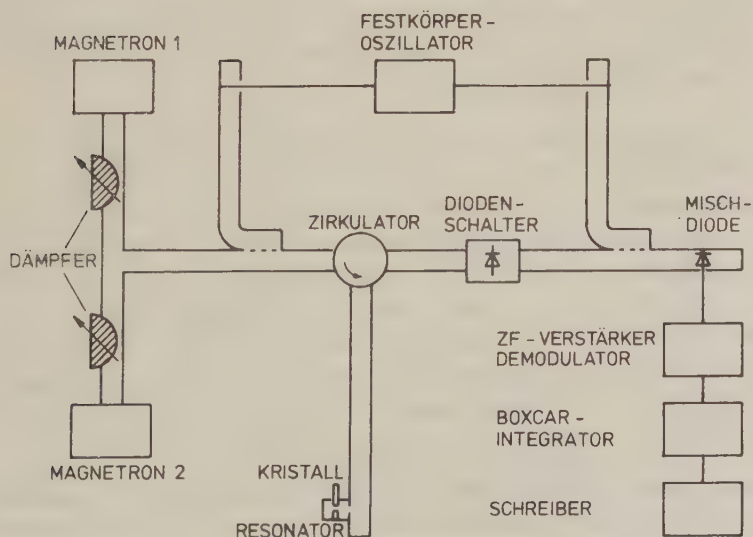


Abb. 6.2 Vereinfachte Darstellung vom Aufbau des
Hyperschallspektrometers

7 Hochfrequenzspektrometer

7.1 Apparatur

Den Aufbau des für die Untersuchung der simultanen Wechselwirkung entwickelten HF-Spektrometers zeigt Abb. 7.1. Seine Wirkungsweise sei kurz skizziert: Der HF-Kreis besteht aus einer Spule und einem parallel geschalteten Kondensator. Er wird in Resonanz betrieben. Wählt man einen geeigneten Abgriff an der Spule als Spulenanschluß, so wird Leistungsanpassung erzielt (Resonanztransformation), und die Reflexion an dem Anschluß verschwindet. Ändert sich anschließend die Güte der Spule durch Übergänge des Spin-Systems, so geht die Anpassung verloren, und ein Teil der einlaufenden Welle wird reflektiert. Die Amplitude der reflektierten Welle ist ein Maß für die Güteänderung. Ein Teil der reflektierten Welle wird über einen Richtkoppler ausgekoppelt, mit einem Schmalbandverstärker verstärkt und multiplikativ mit einer vom Sender kommenden Welle mit gleicher Phase gemischt. Da mit Schallimpulsen gearbeitet wird, ist auch die Signalspannung am Mixerausgang pulsförmig. Es schließt sich daher ein Boxcarintegrator an, dessen Ausgangsspannung mit einem Schreiber registriert wird.

Die Geometrie der HF-Spule zeigt Abb. 7.2. Der Leiter besteht aus einer ca. 0,2 mm breiten und ca. 0,05 mm hohen Silberbahn, die durch ein Verfahren, das der Herstellung von gedruckten Schaltungen ähnelt, auf ein Quarzglasrohr aufgebracht worden ist. Die Spule besitzt eine Induktivität von 0,64 μH . Aus der Frequenz der Eigenresonanz von ca. 300 MHz berechnet sich eine Kapazität von 0,5 pF. Im Experiment wurde die Resonanzfrequenz durch Vergrößerung der Kapazität auf 183 MHz gesenkt. Der so gebildete HF-Kreis hatte bei schwacher Ankopplung eine Güte von 135.

Die Posaune (Ausziehleitung) und die Kurzschlußleitung ermöglichen, durch Widerstandstransformation Fehlanpassungen des HF-Kreises zu korrigieren.

Mit dem Doppelrichtkoppler wird zum einen über den Oszillograph I die Amplitude der hinlaufenden Welle beobachtet und

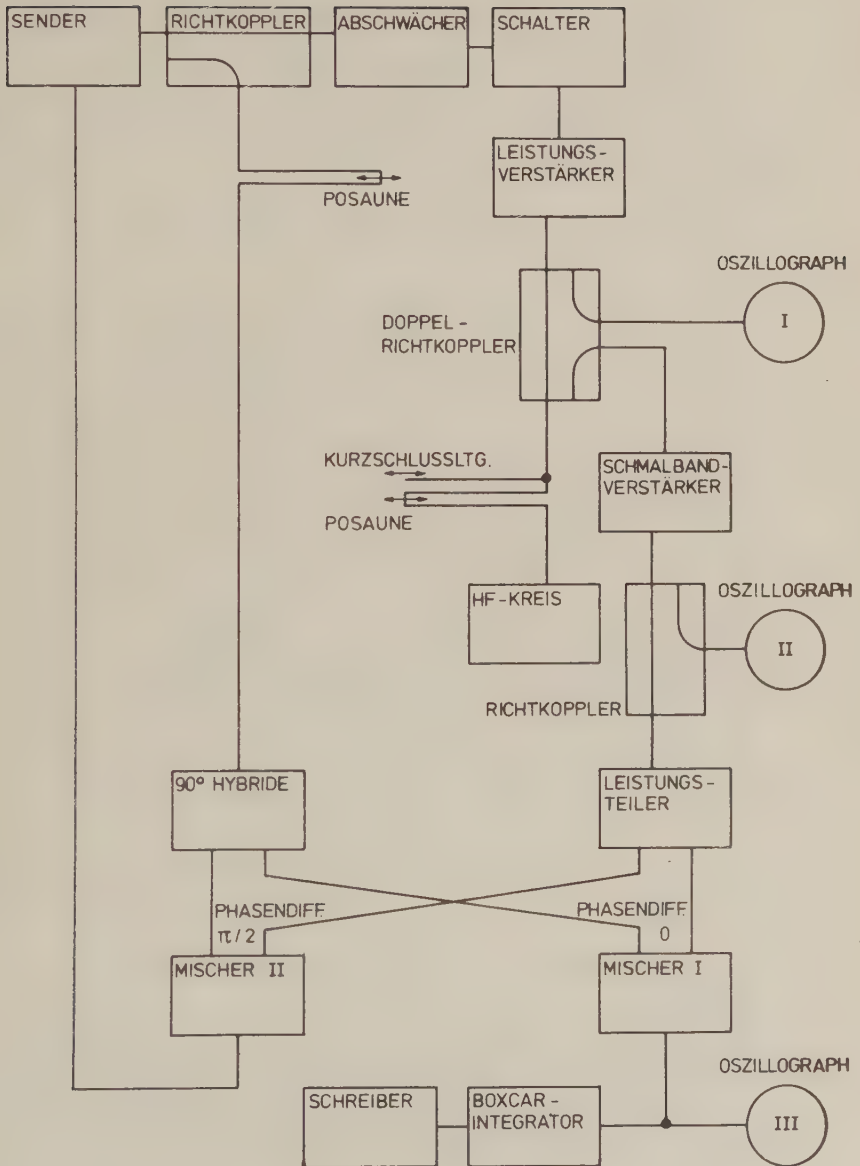


Abb. 7.1 Blockschaltbild des HF-Spektrometers

zum anderen ein Teil der reflektierten Welle ausgekoppelt. Die Koppeldämpfung des Richtkopplers beträgt + 20 dB, seine Richtdämpfung + 40 dB. Die Richtdämpfung entspricht der Unterdrückung bei einer HF-Brücke. Ihr endlicher Wert bewirkt, daß die Berechnung der Güteänderung nach Gleichung (12.20) nicht korrekt ist, sondern einen Fehler von etwa 1 % verursacht.

Die Bandbreite des Schmalbandverstärkers liegt bei 5 MHz, seine Amplitudenverstärkung bei 10^3 .

Im Mischer I wird die vom Schmalbandverstärker kommende Welle mit einer vom Sender kommenden Welle gleicher Phase am Mischereingang multiplikativ gemischt. Die Ausgangsspannung des Mixers ist unempfindlich gegenüber Phasenänderungen und proportional zur Amplitude der reflektierten Welle und damit auch proportional zur Änderung der Güte des Kreises bei Leistungsanpassung (s. Abschnitt 12.1). Im Mischer II werden die gleichen Wellen, jedoch um $\frac{\pi}{2}$ phasenverschoben, gemischt. Die Ausgangsspannung hängt von der Differenz zwischen der Frequenz des Senders und der Resonanzfrequenz des Kreises ab und wird daher zum Nachregeln der Senderfrequenz verwendet (s. Abschnitt 12.1). Die Phase der vom Sender kommenden Welle am Eingang der 90° -Hybride läßt sich durch Leitungslängenänderung mit Hilfe einer Posaune einstellen. Die 90° -Hybride teilt die einlaufende Welle in zwei um $\frac{\pi}{2}$ phasenverschobene Wellen gleicher Amplitude auf.

Die Oszillographen II und III dienen zur Kontrolle der Anpassung des Kreises und der Phasendifferenzen an den Mischereingängen.

Die Ausgangsleistung des Leistungsverstärkers beträgt max. 10 Watt.

Mit dem Schalter können HF-Impulse mit Längen über $0,5 \mu\text{s}$ und mit Flankenanstiegs- bzw. -abfallzeiten von $0,1 \mu\text{s}$ erzeugt werden. Die Lage der Impulse relativ zum Magnetronimpuls läßt sich auf $0,1 \mu\text{s}$ genau festlegen.

7.2 Größe des magnetischen Wechselfeldes

Die Ortsabhängigkeit und die Amplitude des magnetischen Wechselfeldes $\vec{B}(x,y,z)$ werden durch die Geometrie der HF-Spule (s. Abb. 7.2) und die Amplitude I_{KO} des elektrischen Stromes in der Leiterbahn gegeben. Bei Anpassung des Kreises an den Wellenwiderstand R_L der Leitung kann für Kreisgüten Q groß gegen eins

$$R_1 = \frac{\omega_M L}{Q} \quad (7.1)$$

gesetzt werden, und es gilt

$$I_{KO}^2 = \frac{Q}{\omega_M L} \frac{U_{Ho}^2}{R_L} \quad (7.2)$$

Dabei sind: U_{Ho} die Amplitude der Spannung an den Anschlußpunkten des Kreises, L die Induktivität der Spule und R_1 der ohmsche Widerstand im Ersatzschaltbild für den HF-Kreis (s. Abschnitt 12.1).

Zur Beschreibung der Ortsabhängigkeit der Amplitude B_{yo} der y-Komponente des Magnetfeldes wird ein Geometriefaktor f eingeführt, so daß die Beziehung

$$B_{yo}(x,y,z) = \frac{\mu_o}{2\pi} I_{KO} f \quad (7.3)$$

erfüllt ist. Mit Gleichung (7.2) folgt

$$B_{yo}^2(x,y,z) = \left(\frac{\mu_o}{2\pi}\right)^2 \frac{Q}{\omega_M L} \frac{U_{Ho}^2}{R_L} f^2 \quad (7.4)$$

Zur Bestimmung des Geometriefaktors f wurde mit einer Induktionsspule das Feld einer Modellspule ausgemessen. Die Modellspule besitzt die gleiche Geometrie wie die HF-Spule; ihre Maße sind jedoch um den Faktor 20 größer. Abb. 7.3 zeigt den Verlauf von f^2 auf vier zur Stabachse parallelen Geraden für eine Hälfte der HF-Spule. Der Fehler der angegebenen Werte von f^2 liegt bei 10 %.

Das Quadrat der Magnetfeldkomponente in x-Richtung war im Experiment innerhalb des Kristalles überall kleiner als 1 %

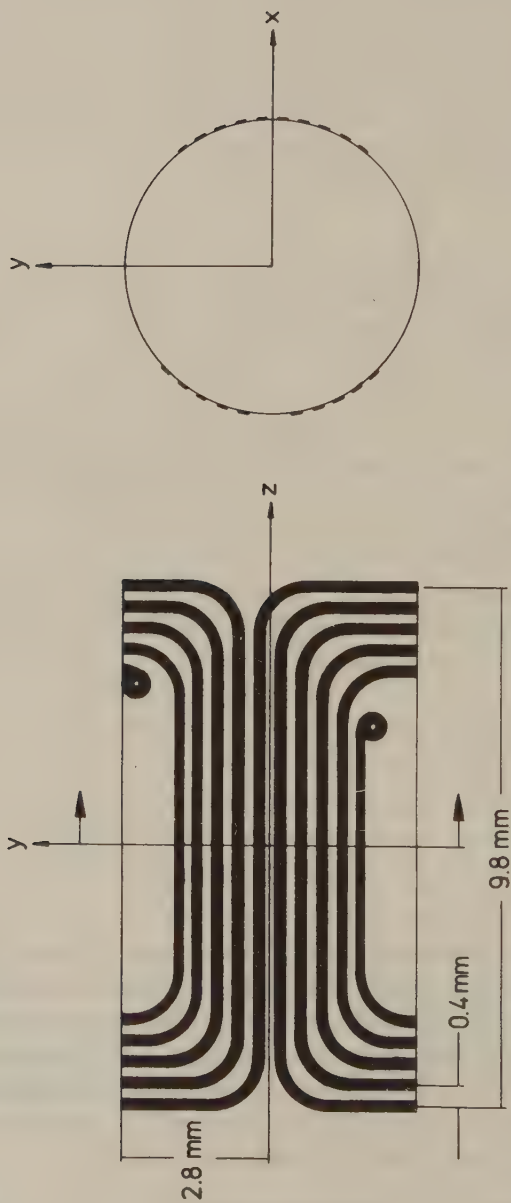


Abb. 7.2 HF-Spule

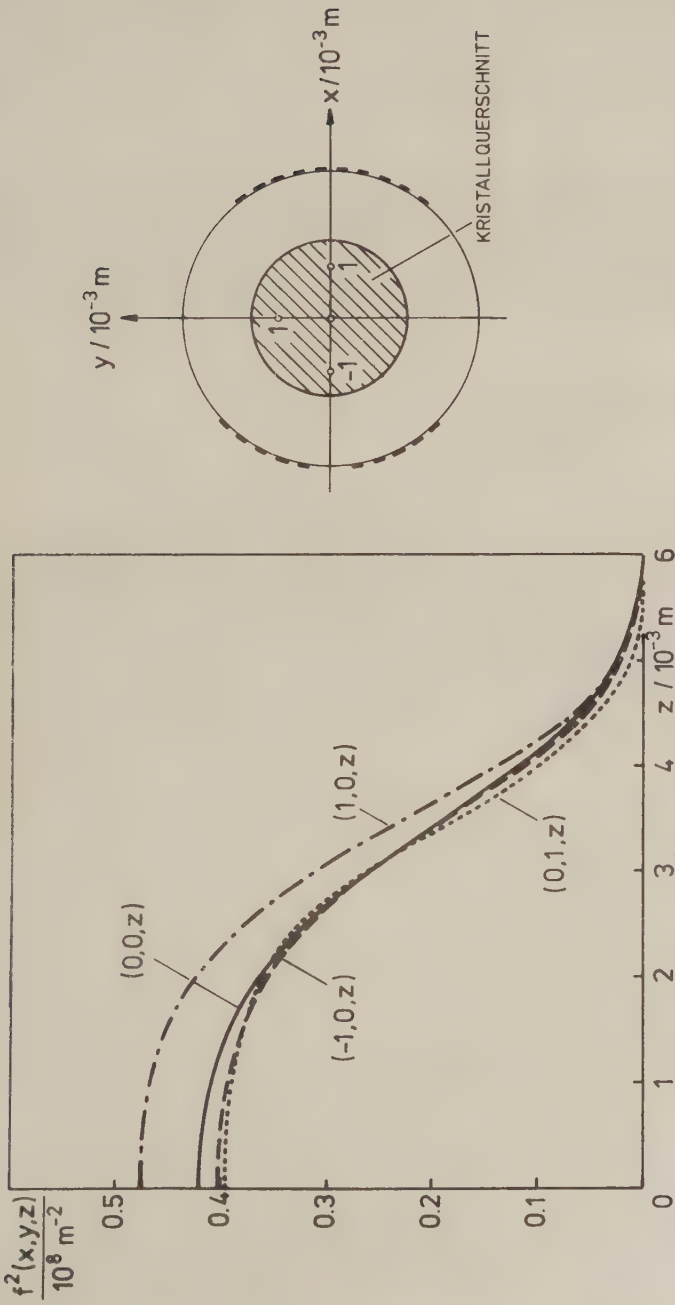


Abb. 7.3 Das Quadrat des Spulengeometriefaktors auf vier Parallelen zur Kristallachse $(0,0,z)$ für eine Spulenhälfte

des Quadrates der maximalen Amplitude des magnetischen Wechselfeldes. Die z-Komponente hat für $\vec{B}_0$ senkrecht zur z-Achse bei den betrachteten Übergängen keine Bedeutung. Es kann daher $B_{y0}^2 = B_M^2$ gesetzt werden. Bei der größten im Experiment verwendeten HF-Leistung von 10 W war $B_M(0,0,0) = 24$ Gauß.

Zur Vereinfachung der Beschreibung der Abnahme der Energie des Schallimpulses durch die simultane Wechselwirkung wird das Magnetfeld der Spule durch ein zylinderförmiges homogenes Feld mit dem Wert $B_{y0}(0,0,0) = B_M(0,0,0)$, dem Querschnitt q des Kristalls und einer effektiven Länge

$$l = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \int B_{y0}^2(x,y,z) dq dz}{B_{y0}^2(0,0,0) \cdot q} \quad (7.5)$$

bezüglich der Kristallachse ersetzt. Diese effektive Länge ist $l = 6,7$ mm. Die analog definierte effektive Zeit, in der sich ein Element des Schallimpulses im HF-Feld zwischen Schallanregung und 1. Echo aufhält, war im Experiment $2\tau_M = (1,18 \pm 0,05) \mu s$.

8 Berechnung der Ausgangssignale der Spektrometer bei simultaner Wechselwirkung

8.1 Werte der Besselfunktionen für die Daten des Experimentes

Die Quadrate der Besselfunktionen geben nach Gleichung (4.14) die relativen Wahrscheinlichkeiten zwischen den Mehrquantenprozessen und dem Einquantenprozeß bei gleichem Wert der Linienformfunktion an, sofern die Wahrscheinlichkeiten klein gegen eins sind. Mit Gleichung (7.4) erhält man für das Argument der Besselfunktion

$$2x = -2 \frac{\gamma_B^B}{\omega_M} \cos \alpha \quad (8.1)$$

den Ausdruck

$$2x = -2 \frac{\gamma_I}{\omega_M} \frac{\mu_O}{2\pi} \sqrt{\frac{Q}{\omega_M L}} \frac{U_{HO}}{\sqrt{R_L}} f \cos \alpha \quad (8.2)$$

wobei $\gamma = \gamma_I$ gesetzt worden ist.

Der HF-Kreis nimmt bei Anpassung die Leistung $P_K = U_{HO}^2 / 2R_L$ auf. In der Tabelle sind für vier HF-Leistungen, mit denen im Experiment gearbeitet worden ist, die Quadrate der Besselfunktionen für den Mittelpunkt der Spule und für $\cos \alpha = 1$ aufgelistet

HF-Leistung P_K	4,5 mW	23 mW	0,2 W	10 W
$x = -\frac{\gamma_I^B}{\omega_M}$	$1,37 \cdot 10^{-2}$	$3,10 \cdot 10^{-2}$	$9,15 \cdot 10^{-2}$	0,647
$J_0^2(2x)$	1	1	0,98	0,39
$J_{\pm 1}^2(2x)$	$1,9 \cdot 10^{-4}$	$9,6 \cdot 10^{-4}$	$8,4 \cdot 10^{-3}$	0,27
$J_{\pm 2}^2(2x)$	$1 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-5}$	0,032
$J_{\pm 3}^2(2x)$	$2 \cdot 10^{-12}$	$2 \cdot 10^{-11}$	$2 \cdot 10^{-8}$	0,003

Tabelle Das Quadrat der Besselfunktionen mit $k \leq 3$ für vier HF-Leistungen

8.2 Schallabschwächungskoeffizient

Wir betrachten einen Schallimpuls, der durch den Kristall läuft, und setzen aufbauend auf den Gleichungen (4.8) und (4.14) unter Vernachlässigung der Sättigung des Spin-Systems für die insgesamt vom kohärenten Schallfeld abgegebene Leistungsdichte p_p an

$$p_p = \frac{d\sigma_p}{dt} = -(A + A_0 + A_1)\sigma_p \quad (8.3)$$

mit

$$A_0 = \frac{\pi}{\hbar^2} n g_I (\omega_B - \omega_p) \frac{(0,75 G_{11} \sin^2 \vartheta)^2}{\rho v_L^2} \hbar \omega_p$$

und

$$A_1 = \frac{\pi}{\hbar^2} n [-g_I (\omega_B - \omega_p) + \sum_k g_I (\omega_B + k\omega_M - \omega_p) J_k^2] \cdot \frac{(0,75 G_{11} \sin^2 \vartheta)^2}{\rho v_L^2} \hbar \omega_p$$

wobei σ_p die Energiedichte des kohärenten Schallfeldes und n die Besetzungsdichtendifferenz ist. Die Abschwächungskoeffizienten A , A_0 und A_1 beschreiben die Grunddämpfung, die Dämpfung durch die normalen APR-Übergänge und die Änderung der Dämpfung durch die simultane Wechselwirkung. Die Grunddämpfung wird in Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Messung als unabhängig von der Energiedichte des Schallfeldes angesetzt.

Ist 2τ die Laufzeit des Schallimpulses im Kristall zwischen Anregung und 1. Echo und $2\tau_M$ die Laufzeit im HF-Feld, so hat die Energiedichte in einem mit dem Schallimpuls mitlaufenden Volumenelement nach Hin- und Rücklauf durch den Kristall von $\sigma_p(x, y, z = t \cdot v_L)$ bei der Schallerzeugung zur Zeit t auf

$$\sigma_p(x, y, z = v_L(t + 2\tau)) = \sigma_p(x, y, z = v_L t) e^{-(A + A_0)2\tau - A_1 2\tau_M} \quad (8.4)$$

abgenommen. Wir setzen voraus, daß für kleine Änderungen der Schalldämpfung durch die simultane Wechselwirkung die Energie im 1. Echo proportional zum Integral des Energiestromes ist, der während der Reflexion des Schallimpulses auf die Stirnfläche des Kristalls fällt, und erhalten bei Vernachlässigung der Änderung der Schallgeschwindigkeit durch Dispersion für den Quotienten der Energien im 1. Echo mit und ohne HF-Einstrahlung

$$\frac{E_{11}}{E_{10}} = e^{-A_1 2\tau_M} \quad (8.5)$$

Für $J_{-1}^2 \ll 1$ und B_O -Feldstärken oberhalb der normalen APR-Linie ergibt sich

$$A_1 = \frac{\pi}{\hbar^2} n g_I (\omega_B - \omega_M - \omega_P) \left(\frac{\gamma_I B_M \cos \alpha}{\omega_M} \right)^2 \frac{(0,75 G_{11} \sin^2 \vartheta)^2}{\rho v_L^2} \hbar \omega_P \quad (8.6)$$

8.3 Hochfrequenzsignal

Aus Gleichung (4.14) folgt bei Vernachlässigung von Sättigungseffekten für die Leistung P_M , die zwischen HF-Feld und Spin-System ausgetauscht wird,

$$P_M = \int_V p_M dV$$

mit

$$p_M = \frac{\pi}{2\hbar^2} n \sum_k k g_I (\omega_B + k\omega_M - \omega_P) J_k^2 V_P^2 \hbar \omega_M \quad (8.7)$$

wobei V das Volumen ist, in dem die Übergänge stattfinden. Die Güte Q des HF-Kreises ändert sich dabei um

$$\Delta Q = -Q \frac{P_M}{P_K + P_M} \quad (8.8)$$

Sofern die Verlustleistung P_K des Kreises ohne den Einfluß simultaner Wechselwirkung groß gegen P_M ist, kann

$$\frac{\Delta Q}{Q} = - \frac{P_M}{P_K} \quad (8.9)$$

gesetzt werden. Nach Gleichung (12.16) des Anhangs ist die Spannung am Ausgang des HF-Spektrometers U_S über

$$U_S = c U_{Ho} U_{Vo} \frac{\Delta Q}{2Q} \quad (8.10)$$

mit der relativen Änderung der Kreislänge verknüpft. c ist eine apparative Konstante, U_{Vo} bezeichnet die Amplitude der vom Sender kommenden Welle, mit der die am Kreis reflektierte und anschließend verstärkte Welle gemischt wird. Mit den Gleichungen (8.7), (4.8) und (8.2) folgt für $J_1^2 \ll 1$

$$U_S = -c U_{Ho} U_{Vo} \frac{\pi}{h^2} n [g_I(\omega_B + \omega_M - \omega_P) - g_I(\omega_B - \omega_M - \omega_P)] \cdot \left(\frac{\gamma_I}{\omega_M} \frac{\mu_O}{2\pi} \cos \alpha \right)^2 \frac{Q}{\omega_M L} \hbar \omega_M \frac{(0,75 G_{11} \sin^2 \vartheta)^2}{\rho v_L^2} \int_V \tilde{\sigma}_P f^2 dv \quad (8.11)$$

wobei $\tilde{\sigma}_P$ die Energiedichte des Schallfeldes einschließlich inkohärenter Anteile ist.

9 Ergebnisse der Messungen

9.1 Vorbemerkung

Die Messungen wurden mit 2 Kristallen (A und B) im Temperaturbereich zwischen 1,8 und 2,1 K durchgeführt. Sofern nichts anderes vermerkt wird, gelten die Ergebnisse für

Kristall A,

einen Winkel $\alpha = 0$ zwischen den Richtungen des hochfrequenten und des statischen Magnetfeldes B_M und B_O ,

einen Winkel $\vartheta = \pi/2$ zwischen [100]-Kristallrichtung und Richtung des Magnetfeldes B_O ,

eine B_O -Feldstärke wenig oberhalb der Linie für $|\Delta M| = 2$ -Prozesse mit $k = 0$.

Die angegebenen Werte der Quadrate der Besselfunktionen $J_k(2x)$ oder ihres Argumentes $2x$ gelten für den Mittelpunkt der HF-Spule. Die in den graphischen Darstellungen eingezeichneten Balken drücken die Streuung der Meßwerte für aufeinanderfolgende Messungen bei konstantem Wert der Abzissenvariablen aus. Auf die Messung der in den Abbildungen angegebenen Schallimpulsenergie E_p wird im Abschnitt 9.4 eingegangen.

Beim Nachweis der simultanen Wechselwirkung mit dem HF-Spektrometer wurde gegenüber dem Nachweis über die Änderung der Echohöhe eine im allgemeinen um den Faktor 4 höhere Schalleistung gewählt und die HF-Leistung herabgesetzt.

9.2 Abhängigkeit der Signale von der Stärke und Richtung des statischen Magnetfeldes

Die Abbildungen 9.1 und 9.2 zeigen die Änderung der Echohöhe durch die simultane Wechselwirkung in Abhängigkeit von der Größe des statischen Magnetfeldes für $(2x)^2 = 0,42$ (HF-Leistung $P_K = 10$ W) und für $(2x)^2 = 8,5 \cdot 10^{-3}$ ($P_K = 0,2$ W). Aufgetragen ist die Wurzel aus der Energie im 1. Echo. Im ersten Fall reichte die Übergangswahrscheinlichkeit für die simultane Wechselwirkung zur praktisch vollständigen Sättigung

des Übergangs für die Zentren aus, deren Eigenresonanz bei vorgegebenem B_0 -Feld in der Nähe - gemessen an der Breite der homogenen Linie - der Kreisfrequenzen $\omega_p - k\omega_M$ mit $k = 0, \pm 1$ lagen. Ohne HF-Einstrahlung konnte nur der Übergang von Zentren mit Eigenresonanz bei ω_p gesättigt werden. Entsprechend deutlich fiel die Echohöhe im Bereich der schwach ansteigenden Flanke der inhomogenen Linie beim Einschalten der Hochfrequenz ab (s. Abb. 9.1).

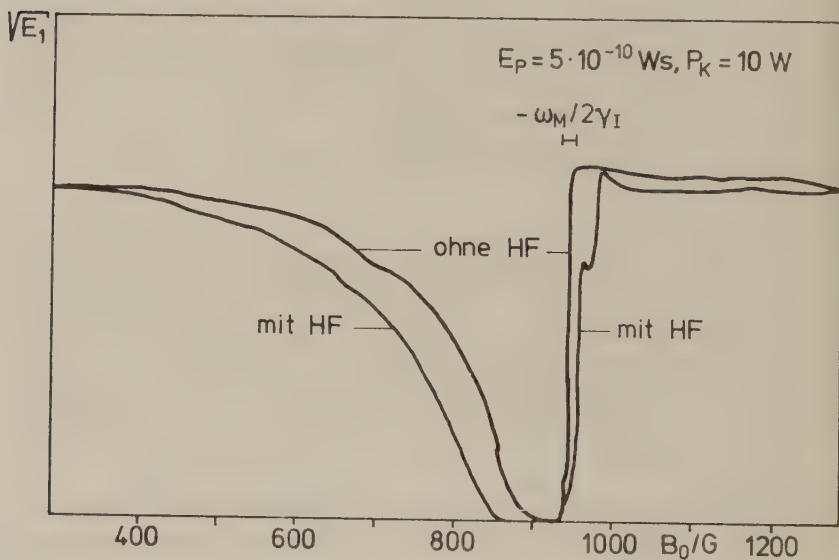


Abb. 9.1 Wurzel aus der Energie des 1. Echos als Funktion der Magnetfeldstärke

Für B_0 -Feldstärken oberhalb der normalen APR-Linie können nur noch Prozesse mit $k < 0$ Schallabsorption bewirken. Für 10 W HF-Leistung gilt $J_{-1}^2 = 0,27$ und $J_{-2}^2 = 0,032$ (siehe Tabelle). Daher war zwischen 940 und 960 Gauß eine sehr starke Abnahme der Echohöhe vorwiegend durch die Prozesse mit $k = -1$ und zwischen 960 und 980 Gauß eine schwächere durch Prozesse mit $k = -2$ zu beobachten (s. Abb. 9.2a). Die geringe Änderung der Echohöhe durch die HF-Einstrahlung zwischen 980 und 1200 Gauß (s. Abb. 9.1) kann bisher noch nicht erklärt werden.

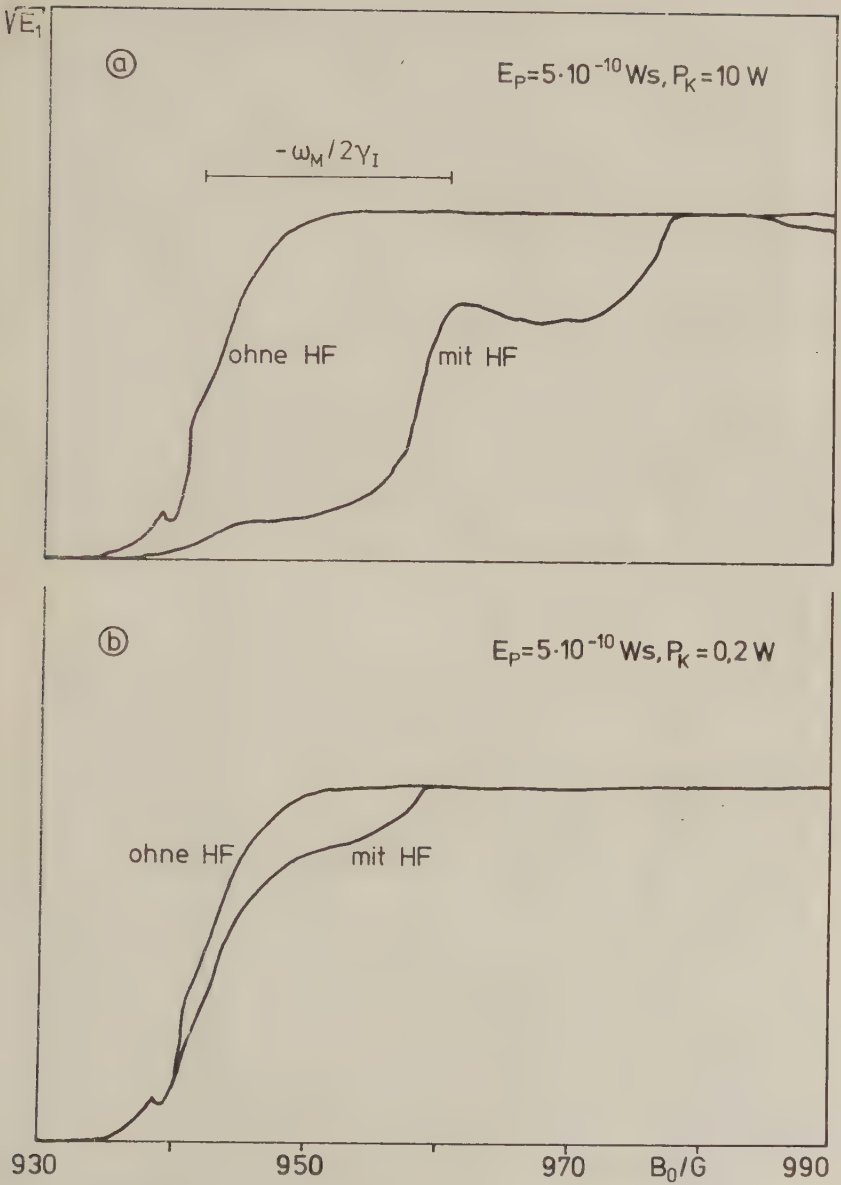


Abb. 9.2 Wurzel aus der Energie des 1. Echos als Funktion der Magnetfeldstärke

Bei einer HF-Leistung von $0,2 \text{ W}$ ($J_{-1}^2 = 8,4 \cdot 10^{-3}$, $J_{-2}^2 = 2 \cdot 10^{-5}$) ist oberhalb der steilen Flanke der APR-Linie nur die simultane Wechselwirkung mit $k = -1$ stark genug, um eine deutliche Änderung der Echohöhe zu bewirken (s. Abb. 9.2b).

Die Abhängigkeit der Amplitude des HF-Signals U_{So} und der Wurzel aus der Energie im 1. Echo vom statischen Magnetfeld zeigt Abb. 9.3a. Die Messung wurde mit einer so kleinen HF-Leistung (23 mW) durchgeführt, daß die simultanen Übergänge die Echohöhe kaum beeinflussten. ($J_{\pm 1}^2 = 9,6 \cdot 10^{-4}$). Das Maximum der negativen Ausgangsspannung der HF-Apparatur erschien in Übereinstimmung mit Gleichung (8.11) in der Nähe der Hochfeldkante der normalen APR-Linie. Dort ist die Differenz der Werte der inhomogenen Linienformfunktion für die Argumente $\omega_B - \omega_M - \omega_P$ und $\omega_B + \omega_M - \omega_P$ am größten. In Richtung kleinerer B_0 -Felder nahm das HF-Signal durch die Verringerung der Schallenergiedichte durch $k = 0$ -Prozesse schneller als die Differenz $g_I(\omega_B - \omega_M - \omega_P) - g_I(\omega_B + \omega_M - \omega_P)$ ab.

Der Nachweis von Schall über Transducer reagiert empfindlich auf die Phasenverteilung des Schalls über die Oberfläche des Transducers. Diese Phasenverteilung kann sich durch Dispersion bei Variation des Magnetfeldes über die Resonanzlinie ändern und so, wie Abb. 9.3b demonstriert, eine vollständig andere Magnetfeldabhängigkeit der Echohöhe ergeben, als bei Proportionalität zwischen Echohöhe und Energie des Schallimpulses zu erwarten wäre. Das HF-Signal war dagegen unabhängig von der Phasenverteilung des Schalls und bewies, daß auch der Anstieg der Energie im 1. Echo um ca. 2 Zehnerpotenzen an der Hochfeldkante der normalen APR-Linie durch Phaseeffekte beim Nachweis und nicht durch Verringerung der Schallabsorption, z.B. durch induzierte Transmission, zu erklären ist. Die Messung zu Abb. 9.3b erfolgte mit Kristall B und höherer Schallenergie.

Die Abhängigkeit des Abschwächungskoeffizienten A_1 und der Amplitude des HF-Signals von dem Winkel α zwischen den Magnetfeldern $\vec{B}_O$ und $\vec{B}_M$ zeigt Abb. 9.4. Die ausgezogenen Kurven beschreiben die Winkelabhängigkeiten, die sich aus den

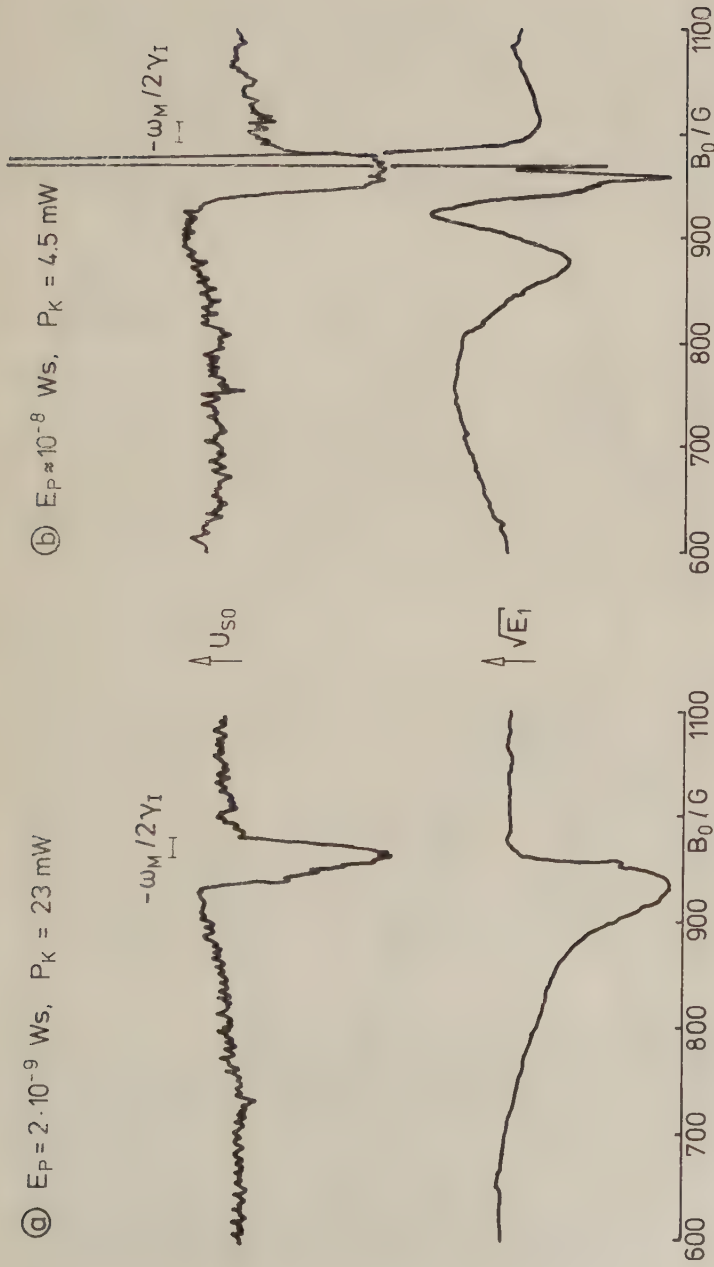


Abb. 9.3 Amplitude des HF-Signals (oben) und Wurzel aus der Energie im 1. Echo (unten) als Funktion der Magnetfeldstärke; (a) mit Kristall A, (b) mit Kristall B und reduzierter Empfindlichkeit des Hyperschallspektrometers gemessen

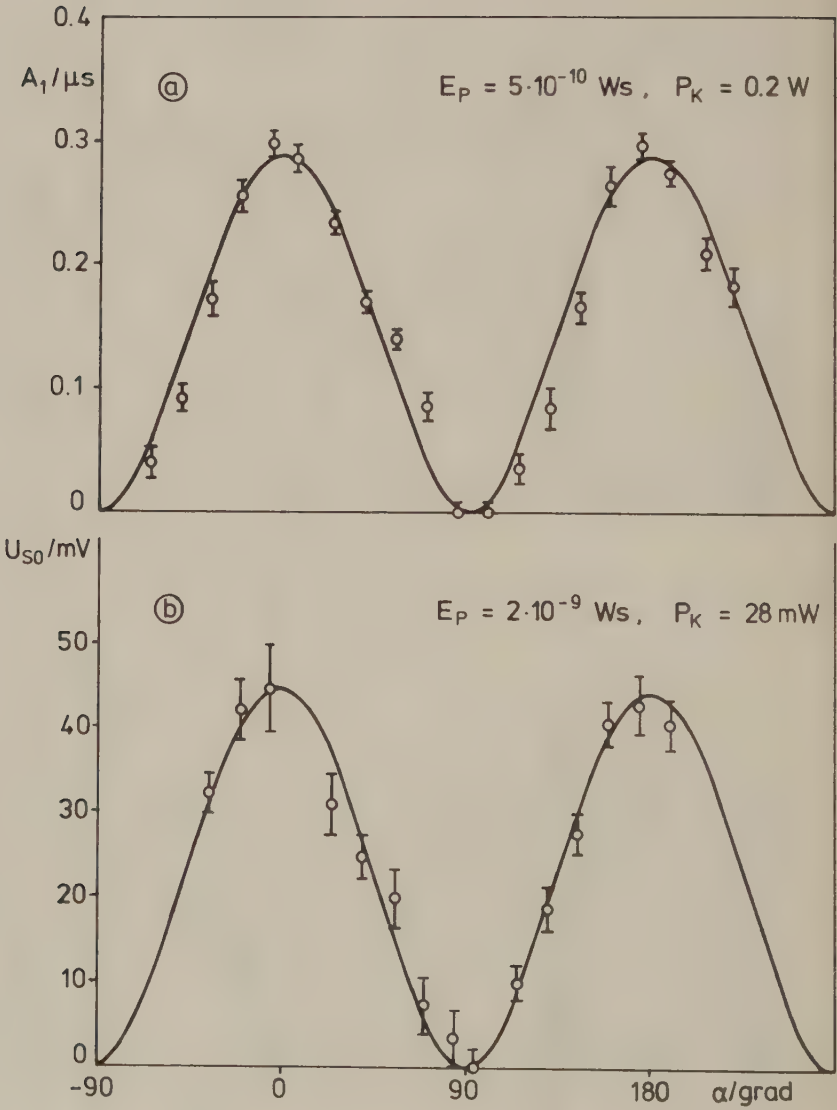


Abb. 9.4 Abschwächungskoeffizient A_1 des Schalls (a) und der Amplitude des HF-Signals (b) vom Winkel zwischen $\vec{B}_0$ und $\vec{B}_M$

Gleichungen (8.6) und (8.11) unter Berücksichtigung der teilweisen Sättigung der Übergänge ergeben. Die Punkte sind gemessen. Berechneter und gemessener Verlauf stimmen bei dem HF-Signal überein, während beim Abschwächungskoeffizienten des Schalls Abweichungen festzustellen sind, die mit dem Auftreten eines ca. 20 Gauß breiten Maximums in der Echohöhe an der Hochfeldkante der APR-Linie korreliert waren.

9.3 Zeitabhängigkeit der Signale

Die zeitliche Lage der simultanen Wechselwirkung relativ zum Magnetronimpuls wurde mit $0,6 \mu\text{s}$ langen HF-Impulsen abgetastet. Die gemessene Abhängigkeit der Schallabsorption (s. Abb. 9.5) entspricht dem zeitlichen Verlauf der simultanen Wechselwirkung, wie er nach der Geometrie des HF-Feldes, der Länge des kohärenten Schallimpulses, der Schallgeschwindigkeit und der Grunddämpfung des Kristalls von ca. 3 dB/cm zu erwarten war.

Die Zeitabhängigkeit des HF-Signals zeigt Abb. 9.6. Gestrichelt eingezeichnet ist eine Signalform, die unter Berücksichtigung des mit HF-Impulsen gemessenen Zeitverhaltens unter der Annahme berechnet wurde, daß HF-Energie nur bei Wechselwirkung mit dem kohärenten Schallimpuls absorbiert werden kann. Zur Anpassung an das Maximum der gemessenen Kurve (durchgezogen) wurde die berechnete Kurve um $0,8 \mu\text{s}$ nach höheren Zeiten hin verschoben. Die Fläche unter der berechneten Kurve ist etwa um den Faktor 0,6 kleiner als die unter der gemessenen Kurve.

Neben der zeitlichen Verzögerung fällt der langsamere Anstieg und der wesentlich langsamere Abfall der Meßkurve auf. Ein ähnlicher Verlauf wurde auch mit Kristall B gemessen. Die Abflachung im Abfall kann durch Schall erklärt werden, der nach elastischer Streuung eine andere Ausbreitungsrichtung als der primäre Schallimpuls besaß. Budreau und Carr¹⁶⁾ folgerten aus ihren Messungen, daß die Streuung isotrop ist und vorwiegend an lokalen Verspannungen aufgrund von Kristall-

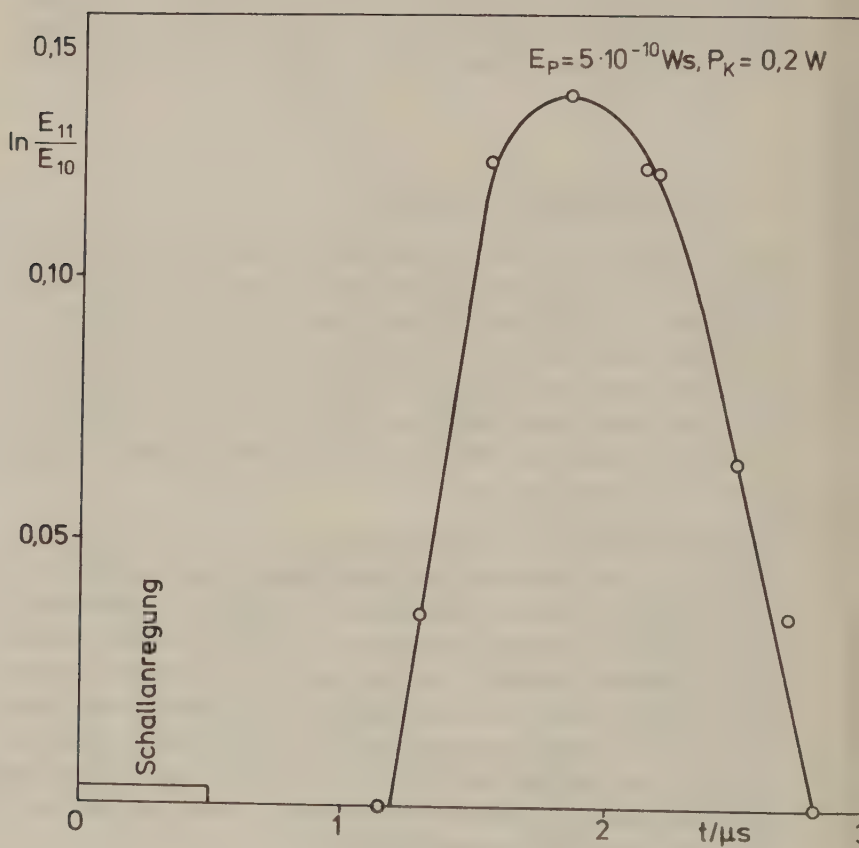


Abb. 9.5 Zeitlicher Verlauf der Abschwächung des kohärenten Schallimpulses durch die simultane Wechselwirkung

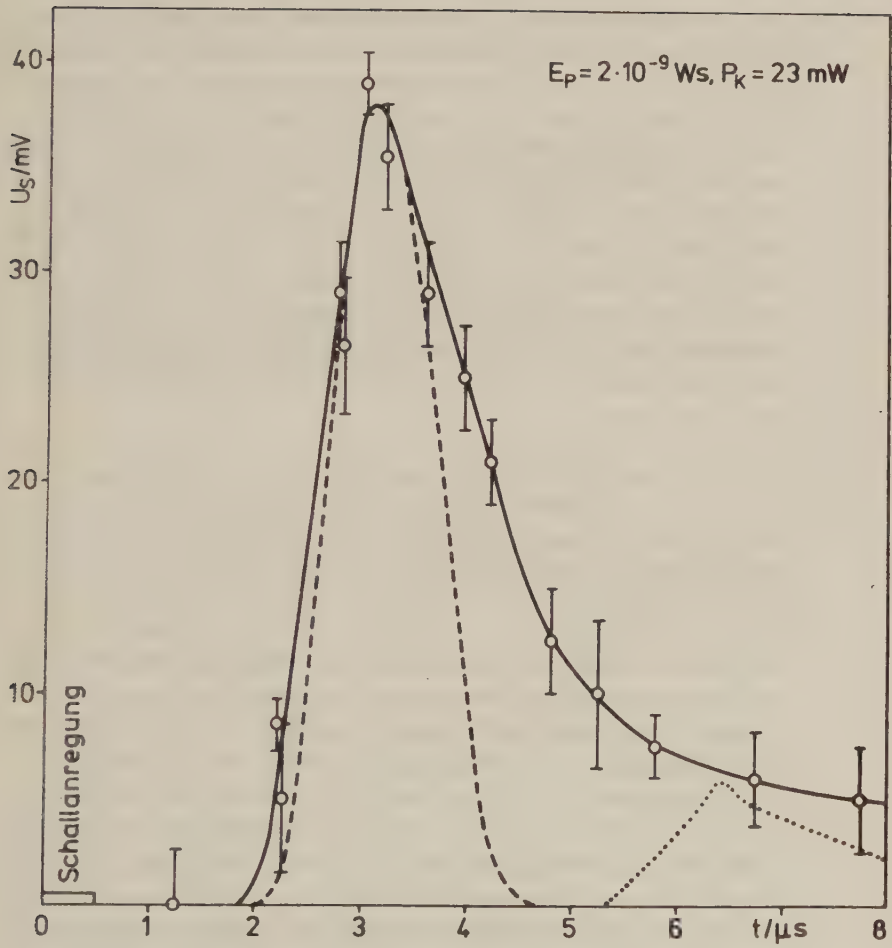


Abb. 9.6 Zeitlicher Verlauf des HF-Signals

fehlern erfolgt, daß aber auch zusätzlich Konversion in transversale Moden auftreten kann.

Die gepunktete Kurve in Abb. 9.6 entspricht dem HF-Signal für den 2. Durchlauf des Schallimpulses, wenn vorausgesetzt wird, daß das zeitliche Verhalten des Signals das gleiche wie für den 1. Durchlauf war, das Signal um 27 % durch Sättigung abnahm und sich die Energie im Impuls durch die Grunddämpfung in $2 \mu\text{s}$ um den Faktor $1/e$ verringerte (Abklingzeit). Die Abklingzeit wurde aus dem Verhältnis der Energie im 1. Echo zu der im 2. bzw. im 3. Echo mit einem Fehler von $\pm 1 \mu\text{s}$ abgeschätzt. Die Ergebnisse von Sättigungsmessungen mit 2 Schallimpulsen und das beobachtete zeitliche Verhalten des HF-Signals zeigen, daß die Abklingzeit für den gestreuten Schall auch nicht viel größer als $2 \mu\text{s}$ gewesen sein kann.

Für die Untersuchung des gestreuten Schalls wäre eine Messung mit zur Ausbreitungsrichtung des kohärenten Impulses parallelen $\vec{B}_O$ - und $\vec{B}_M$ -Feldern günstig. Bei dieser Anordnung können nur Übergänge mit gestreutem Schall zum HF-Signal beitragen.

Die Ursache für die Verzögerung des HF-Signals kann nicht angegeben werden. Aus Messungen der Sättigung des Spin-Systems kann jedoch geschlossen werden, daß ein großer Teil der Übergänge durch simultane Wechselwirkung in der Zeit erfolgte, in der sich der primäre Schallimpuls im HF-Feld befand. Der Abschwächungskoeffizient des Schalls durch die simultane Wechselwirkung verringerte sich bei einer Schallenergie von $E_p = 0,5 \cdot 10^{-9} \text{ Ws}$ und einer HF-Leistung von 90 mW durch Sättigung der Spins um $(9 \pm 3) \%$. Ohne gestreuten Schall und ohne Relaxation würde danach für einen 2. auf den 1. folgenden Schallimpuls eine Abnahme des Abschwächungskoeffizienten von ca. 18 % durch die Wirkung des 1. Impulses zu erwarten sein; beobachtet wurde eine Abnahme von $(27 \pm 3) \%$.

Der Sättigungseffekt war am stärksten, wenn beide Schallimpulse mit der gleichen Frequenz angeregt wurden. Daraus und

aus der Abhängigkeit des HF-Signals von der Stärke des B_0 -Feldes kann geschlossen werden, daß der gestreute Schall, der das HF-Signal beeinflusste, die Frequenz des primären Schalls besaß. Sättigung durch den gestreuten Schall mußte also mit dem 2. Schallimpuls über die Änderung der Echohöhe nachweisbar gewesen sein.

Die relativ geringe Zunahme der Sättigung des Spin-Systems, nachdem der 1. Schallimpuls das HF-Feld verlassen hatte, zeigt, daß die Ursache für die zeitliche Verzögerung wahrscheinlich außerhalb des Kristalls lag. Eine weitere Stütze für diese Annahme ergibt sich aus der im nächsten Abschnitt durchgeführten Diskussion über die relativen Anteile der simultanen Wechselwirkung mit dem kohärenten und dem inkohärenten Schall am HF-Signal.

9.4 Energie des Schallimpulses

Die Ermittlung der Energie des Schallimpulses aus der Energie des 1. Echos führt aufgrund der Phasenempfindlichkeit zu zu kleinen Werten. Mit Hilfe des HF-Signals kann eine Bestimmung durchgeführt werden, bei der nur die relative Änderung der Echohöhe durch die simultane Wechselwirkung eingeht: Das Verhältnis der aus dem Schallfeld und dem HF-Feld absorbierten Energien ist für simultane Prozesse mit $k = -1$ gleich dem Verhältnis der Frequenzen. Bei der Messung des zeitlichen Verlaufs des HF-Signals ($P_K = 23 \text{ mW}$) wurde durch die simultane Wechselwirkung pro Schallanregung $1,4 \cdot 10^{-12} \text{ Ws}$ HF-Energie - also $7 \cdot 10^{-11} \text{ Ws}$ Schallenergie - absorbiert. Durch diese Absorption nahm die Energie im 1. Echo um 3,4 % ab. Würde nur der kohärente Schall Übergänge verursacht haben, so ergäbe sich daraus, gemittelt über die Durchlaufzeit durch das HF-Feld, eine Energie von $E_p = 2 \cdot 10^{-9} \text{ Ws}$. Durch die Winkelabhängigkeit des Matrixelements kann die Übergangswahrscheinlichkeit durch gestreuten Schall kleiner als die für longitudinalen Schall in [100]-Richtung sein, so daß die Schallenergie größer als der oben angegebene Wert gewesen sein muß. Er wird daher als effektiv bezeichnet.

Auch für transversalen Schall, der - wie von Carr und Budreau bei einem Kristall beobachtet ¹⁶⁾ - durch Konversion aus dem longitudinalen Schall entstehen kann, ergibt sich bei Ausbreitung in [100]-Richtung eine kleinere Übergangswahrscheinlichkeit als für longitudinalen Schall. Bei der Abklingzeit von 2 μ s für den kohärenten Schallimpuls betrug die Energie des Impulses beim 1. Durchlauf durch das HF-Feld im Mittel 45 % der erzeugten Schallenergie. Da aufgrund Dämpfung nur ein Teil des gestreuten Schalls in die HF-Spule gelangte, kann angenommen werden, daß der Hauptteil des HF-Signals durch Wechselwirkung mit dem kohärenten Schallimpuls hervorgerufen wurde, besonders, da durch die andere Ausbreitungsrichtung die Übergangswahrscheinlichkeit für den gestreuten Schall kleiner war.

9.5 Abhängigkeit der Grunddämpfung von der Energiedichte des Schallfeldes

Die Amplitude des HF-Signals in Abhängigkeit von der Energie des vom Resonator aufgenommenen Mikrowellenimpulses ist in Abb. 9.7 dargestellt. Innerhalb der Meßgenauigkeit ergab sich eine Proportionalität zwischen den beiden Größen, sofern man von der durch Sättigung zu erklärenden Abweichung bei der höchsten Impulsenergie ($E_p = 2 \cdot 10^{-9}$ W) absieht. Daraus folgt, daß im Rahmen der Meßgenauigkeit die Grunddämpfung unabhängig von der Schallintensität war. In Übereinstimmung damit gelang es auch nicht, Oberwellen des angeregten Schalls durch ein HF-Signal nachzuweisen. Es ist aber anzunehmen, daß die Erzeugung Harmonischer durch nicht-lineare Prozesse, über die mehrere Autoren berichten ^{24) 25)}, bei höheren Energiedichten einsetzt.

9.6 Entwicklung der Besetzungsdifferenz nach Sättigung des Überganges

Die Zeitabhängigkeit der Wiedereinstellung des Boltzmann-

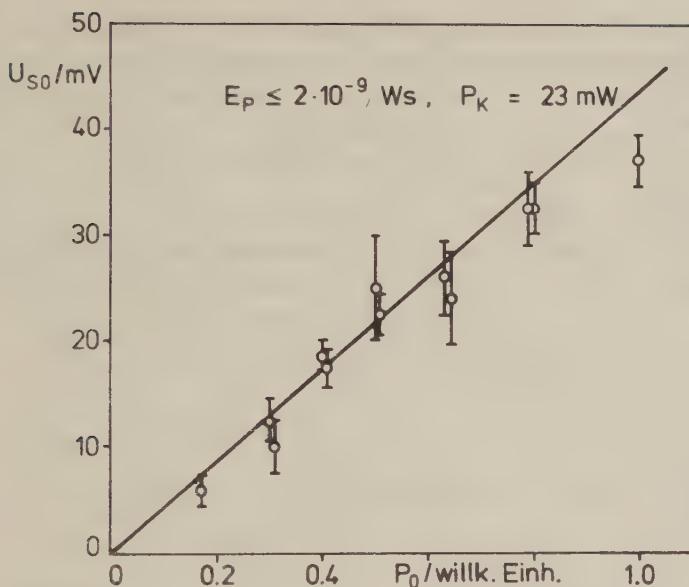


Abb. 9.7 Die Amplitude des HF-Signals in Abhängigkeit von der vom Mikrowellenresonator aufgenommenen Impulsenergie

gleichgewichtetes nach einer Sättigung des Spin-Systems kann mit einem Doppelimpulsexperiment gemessen werden (pulse-saturation-recovery Methode): Der 1. Impuls sättigt über die simultane Wechselwirkung das Ensemble von Spins, deren Eigenfrequenzen $\omega_S/2\pi$ - gemessen an der Breite der homogenen Linienformfunktion - in der Nähe der Frequenz $(\omega_P - \omega_M)/2\pi$ liegen. Mit dem 2. Impuls wird die zeitliche Entwicklung der Besetzungsdifferenz beobachtet.

Die Energiedichte der Schallimpulse sei σ_{P1} und σ_{P2} , die jeweiligen HF-Leistungen P_{K1} und P_{K2} . Der zeitliche Abstand t zwischen den Impulsen soll groß gegen die Länge der Impulse τ_1 und τ_2 sein. Betrachten wir die spektrale Besetzungsdifferenzdichte $n_w(\vec{r}, \omega_S, t)$ der Spins mit der Eigenfrequenz $\omega_S/2\pi$ am Ort $\vec{r}$ im HF-Feld. Durch den Durchlauf des 1. Impulses zur Zeit $t = 0$ habe sie um $\Delta n_w(\vec{r}, \omega_S)$ abgenommen. Unter der Voraussetzung, daß sich in der darauffolgenden Zeit

die spektrale Besetzungsdifferenzdichte nur durch Spin-Gitter-Relaxation mit einer charakteristischen Zeit T_1 ändert, folgt die zeitliche Entwicklung einem Exponentialgesetz

$$n_w(\vec{r}, \omega_S, t) = n_w(\vec{r}, \omega_S, t=\infty) - \Delta n_w(\vec{r}, \omega_S) e^{-\frac{t}{T_1}} \quad (9.1)$$

Für die Abschwächung des 2. Schallimpulses durch Prozesse mit $k = -1$ ergibt sich bei Vernachlässigung der zusätzlichen Sättigung beim Durchlauf des 2. Impulses der Koeffizient

$$A_1(t) = +\frac{\pi}{\hbar^2} J_{-1}^2 \frac{(0,75 G_{11})^2}{\rho v_L^2} \hbar \omega_P \int_0^\infty n_w(\vec{r}, \vec{\omega}_S, t) \cdot g_H(\omega_S - \omega_M - \omega_P) d\omega_S \quad (9.2)$$

und es folgt mit Gleichung (9.1)

$$\frac{A_1(t=\infty) - A_1(t)}{A_1(t=\infty)} = e^{-\frac{t}{T_1}} \frac{\int_0^\infty \Delta n_w(\vec{r}, \omega_S) g_H(\omega_S - \omega_M - \omega_P) d\omega_S}{\int_0^\infty n_w(\vec{r}, \omega_S, t=\infty) g_H(\omega_S - \omega_M - \omega_P) d\omega_S} \quad (9.3)$$

Die Änderung der Besetzungsdifferenz zwischen den Zeemanni-niveaus $|+1\rangle$ und $|-1\rangle$ von Fe^{2+} in MgO durch Spin-Gitter-Relaxation kann mit einer charakteristischen Zeit beschrieben werden ⁷⁾. Das Ergebnis der Messungen des Abschwächungskoeffizienten A_1 des 2. Schallimpulses als Funktion des zeitlichen Abstandes zum 1. Impuls zeigt die Abbildung 9.8. Aus Gründen der Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses mußte im Experiment eine Verfälschung der gemessenen Abschwächungskoeffizienten um etwa 20 % durch die zusätzliche Sättigung beim Durchlauf des 2. Impulses hingenommen werden. Der Widerspruch zwischen Meßergebnis und Gleichung (9.3) kann dadurch jedoch nicht erklärt werden. Taylor und Bartlet ²⁶⁾ haben mit der Phonon-Echo-Methode Lorentz-Spektral-Diffusion nachgewiesen. Sie hat zur Folge, daß sich die Sättigung über die inhomogene Linie verteilt und kann die Ursache für die Diskrepanz zwischen dem Ergebnis der Messung und der Gleichung (9.3) sein ²⁷⁾.

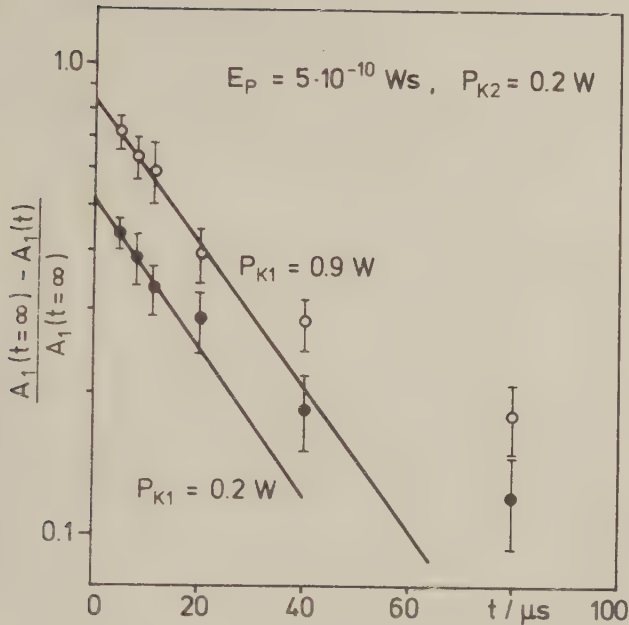


Abb. 9.8 Die zeitliche Entwicklung des Abschwächungskoeffizienten A_1 des 2. Schallimpulses beim Doppelimpulsexperiment. Der Verlauf der Geraden ist proportional $-t/28 \mu\text{s}$

Dem Verlauf der gemessenen Kurve bei $t = 10 \mu\text{s}$ entspricht eine charakteristische Zeit von $T_1 = 28 \mu\text{s}$. Lewis und Stoneham ⁷⁾ geben für die Spin-Gitter-Relaxationszeit bei einer Temperatur von 2 K einen Wert von $50 \mu\text{s}$ an.

9.7 Bestimmung des Betrages der Spin-Phonon-Kopplungskonstanten G_{11}

Der Bestimmung der Spin-Phonon-Kopplungskonstanten G_{11} liegt die Gleichung (8.6) zugrunde. Mit einer Hochfrequenzleistung von $P_K = (91 \pm 10) \text{ mW}$ und einer Energie des Schallim-

pulses von $5 \cdot 10^{-10}$ Ws ergab die Messung bei einer Temperatur von $(2,00 \pm 0,05)$ K und einer Schallfrequenz von 9,06 GHz als maximalen Wert bezüglich der Abhängigkeit vom statischen Magnetfeld für $A_1 \cdot 2\tau_M$: $0,202 \pm 0,07$. Der Einfluß von Sättigung ist bei diesem Wert bereits korrigiert. Die Lieferfirma der Kristalle hat eine Dotierung von $n_O = 1,15 \pm 0,3 \cdot 10^{25}$ Fe²⁺-Ionen in einem Kubikmeter angegeben. Daraus folgt nach

$$n = \frac{n_O}{3} \frac{\hbar(\omega_P + \omega_M)}{kT} \quad (9.4)$$

die Besetzungsdifferenzdichte.

Das Maximum der Formfunktion der inhomogenen Linie wurde aus der Magnetfeldabhängigkeit der Abnahme der Echohöhe durch die $k = 0$ -Prozesse bestimmt. Insbesondere für große Winkel ϑ zwischen den Richtungen des statischen Magnetfeldes und der Ausbreitung des Schalls kann wegen der Phasempfindlichkeit des Echonachweises eine Störung der Messungen durch Dispersion nicht ausgeschlossen werden. Mit abnehmendem Winkel verringert sich dieser Effekt aufgrund der Winkelabhängigkeit der Wechselwirkung. (Das Matrixelement ist nach Gleichung (4.6) proportional zu $\sin^2 \vartheta$.) Es wurden Messungen bei $\vartheta = 90^\circ$, 30° und 15° durchgeführt. Als mittlerer Wert ergab sich für das Maximum der Linienformfunktion

$$g(\omega_O - \omega_P) = (1,1 \pm 0,3) \cdot 10^{-10} \text{ s}^{-1}$$

In Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Lewis²⁸⁾ war innerhalb der Fehlergrenzen kein Einfluß des Winkels festzustellen.

Die Messungen der Linienformfunktion wurden durch ungewöhnliche Instabilitäten der Hyperschallapparatur gestört. Es erscheint daher eine genauere Bestimmung durchaus möglich. Der Einsatz der simultanen Wechselwirkung zu diesem Zweck ist nur dann von Vorteil, wenn die Hochfrequenz vergleichbar oder größer als die Linienbreite ist. Allerdings würde sich dann eine wesentliche Erhöhung der Meßgenauigkeit ergeben.

Für den Betrag der Spin-Phonon-Kopplungskonstanten ergibt sich aus Gleichung (8.6)

$$|G_{11}| = 1,1 \cdot 10^{-20} \text{ Ws} \pm 30 \%$$

oder in den literaturüblichen Einheiten:

$$|G_{11}| = 580 \text{ cm}^{-1} \pm 30 \%$$

Der Fehler wird vorwiegend durch die Unsicherheit der Dotierung und des maximalen Wertes der Linienformfunktion verursacht und kann durch genauere Ermittlung dieser Größen herabgesetzt werden.

Watkins und Feher ²⁹⁾ bestimmten mit Hilfe von EPR-Messungen an verspannten Kristallen die Kopplungskonstante zu $G_{11} = 800 \text{ cm}^{-1}$ und geben einen Fehler von $\pm 15 \%$ an. Shiren ³⁰⁾ hat über die Wechselwirkung mit Hyperschall einen Wert von $|G_{11}| = 650 \text{ cm}^{-1}$ ermittelt. Seine Meßwerte streuten um ca. $\pm 20 \%$. Lewis und Stoneham ⁷⁾ vermuten, daß beide Werte mit einem systematischen Fehler bis zu 50% behaftet sein können. Leider liegen über die beiden ersten Arbeiten nur Zusammenfassungen vor, in denen die Fehlerquellen nicht diskutiert werden.

Henning und den Boef ³¹⁾ bestimmten aus der Auswirkung von Schall mit einer Frequenz von 62 kHz auf das EPR-Signal den Betrag der Spin-Phonon-Kopplungskonstanten $|G_{11}| = 680 \text{ cm}^{-1} \pm 25 \%$. In ihre Auswertung geht ein Wert der homogenen Linienbreite ein, den Lewis und Stoneham ⁷⁾ für höhere Dotierungen gemessen haben.

Für den Absolutbetrag des Quotienten zwischen den beiden Spin-Phonon-Kopplungskonstanten G_{11} und G_{44} geben Lewis und Stoneham ⁷⁾ den Wert $1,59 \pm 0,09$ an. Sie ermittelten ihn aus Messungen der Winkelabhängigkeit der Linienbreite der $|\Delta M| = 1$ -Übergänge.

Theoretisch leiteten Guermeur e.a. ³²⁾ unter vereinfachenden Annahmen für die Spin-Phonon-Kopplungskonstanten die Ausdrücke

$$G_{11} = - \frac{6}{35} R \beta_2 + \frac{10}{63} R \beta_4$$

$$G_{44} = - \frac{3}{35} R \beta_2 + \frac{1}{21} R \beta_4$$

mit

$$\beta_i = \frac{Ze'e \int_0^{\infty} (f(r))^2 r^{i+2} dr}{R^{i+2}}$$

ab. Dabei sind: Ze' die effektive Ladung der Sauerstoffionen im MgO-Gitter, e die Elementarladung, r der Abstand von der Mitte des Eisenions, $f(r)$ der Radialteil der d-Einelektronenwellenfunktion und R der Abstand zwischen den Eisenionen und den nächsten Sauerstoffionen. Mit Hilfe eines von Low und Weger ³³⁾ gemessenen Wertes für $R \beta_4$ und eines von Freeman und Watson ³⁴⁾ theoretisch ermittelten Verhältnisses für β_2/β_4 berechneten Guermeur e.a. die Werte der Spin-Phonon-Kopplungskonstanten. Beide Werte sind um etwa den Faktor 6 größer als die gemessenen.

10 Daten zum Experiment

1) Kristalllänge	15 mm
Kristalldurchmesser	3 mm
Dotierung Fe^{2+}	w/0,03 %
Gyromagnetisches Verhältnis	$\sim 3,01 \cdot 10^{11} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-2}$
Maximum der inhomogenen Linienformfunktion für $ \Delta M = 2$ -Übergänge	$1,1 \cdot 10^{-10} \text{ s}^{-1}$
Spin-Phonon-Kopplungskonstante G_{11}	$1,1 \cdot 10^{-20} \text{ Ws}$
Temperatur	$1,8-2,1 \text{ K}$
Energie des Schallimpulses	$5 \cdot 10^{-10}$ bis 10^{-8} Ws
2) Abklingzeit des longitudinalen Schalls längs der [100]-Richtung	ca. 2 μs
Transversale Relaxationszeit ⁷⁾	ca. 0,03 μs
Zeit, in der sich die Auswirkung einer Sättigung des $ \Delta M = 2$ -Überganges auf ein Signal um 90 % reduziert hat	ca. 100 μs
Schwingungsdauer der Schallwelle	$1,10 \cdot 10^{-4} \mu\text{s}$
Länge des Schallimpulses	0,5 μs
Abstand zwischen zwei Schallanregungen	1300 μs
Laufzeit des longitudinalen Schallimpulses zwischen Anregung und 1. Echo	
im Kristall	3,3 μs
desgl. im HF-Feld	1,18 μs
Charakteristische Zeit des Mikrowellenresonators	$1,3 \cdot 10^{-3} \mu\text{s}$
Schwingungsdauer der Hochfrequenz	$5,45 \cdot 10^{-3} \mu\text{s}$
Charakteristische Zeit des HF-Kreises	$5,9 \cdot 10^{-2} \mu\text{s}$

11 Anwendungsmöglichkeiten der simultanen Wechselwirkung

Die Ausnutzung der simultanen Wechselwirkung unter Verwendung eines elektromagnetischen Feldes mit einer zur Schallfrequenz relativ kleinen Hochfrequenz stellt eine methodische Erweiterung der APR dar. Schon ohne Nachweis der HF-Absorption verspricht ihre Anwendung Vorteile, so zum Beispiel bei der Untersuchung nichtlinearer Wechselwirkungen und bei Hyperschall-Spin-Echo-Experimenten. Im ersten Fall läßt sich durch Ändern der HF-Amplitude bei konstanter Schalleinstrahlung die Wechselwirkung zwischen Schallfeld und paramagnetischen Zentren variieren; im zweiten Fall können durch Ein- und Ausschalten des HF-Feldes die Zeiten, in denen Übergänge möglich sind, beschränkt und so Störungen vermieden werden, wie etwa die Absorption des durch den Spin-Echo-Effekt entstehenden Schallimpulses auf dem Weg zum Transducer²⁶⁾³⁵⁾. Der Schallabsorptionskoeffizient bei simultaner Wechselwirkung ist für Frequenzen des magnetischen Wechselfeldes, die vergleichbar mit der Halbwertsbreite der homogenen Linienformfunktion sind, von dieser Breite abhängig. Es können daher durch Sättigungsmessungen mit variabler Hochfrequenz Aussagen über die homogene Linienverbreiterung gewonnen werden.

Der Nachweis der simultanen Wechselwirkung mit HF-Spektrometern eröffnet weitere Möglichkeiten der Anwendung, so z.B. wenn die Schalldetektion über piezoelektrische Transducer fragwürdig oder überhaupt nicht möglich ist, wie etwa bei Schall hoher Frequenz oder bei inkohärenten Schallfeldern. Für die Untersuchung strainabhängiger Effekte ist der Vorteil durch die Verbesserung der Bestimmung der Schallimpulsenergie (s. Abschnitt 9.4) offensichtlich. Die Erzeugung von Harmonischen der eingestrahlten Schallfrequenz kann durch die HF-Signale bei entsprechenden Vielfachen der Resonanzfeldstärke des statischen Magnetfeldes für Übergänge bei der Grundfrequenz bestimmt werden. Gelingt es, mehrere Durchläufe des Schallimpulses durch die HF-Spule mit dem HF-Spektrometer zu beobachten, so ist auch die Messung der Schalldämpfung unabhängig von dem piezoelektrischen Nach-

weis des Schalls möglich.

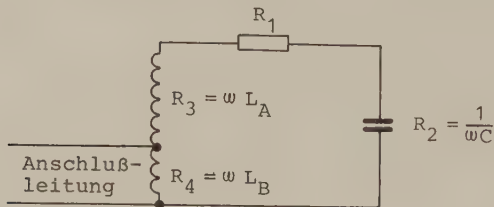
Die Anwendung der Methode auf andere Systeme als $\text{Fe}^{2+}:\text{MgO}$ erscheint trotz der meist wesentlich kleineren Spin-Phonon-Kopplungskonstanten aussichtsreich, da bei schwächerer Spin-Gitter-Kopplung auch eine kleinere inhomogene Verbreiterung der Linie auftritt. Neben der Vergrößerung der spektralen Besetzungsdifferenz ergibt sich daraus der Vorteil, mit kleinerer Hochfrequenz und damit größerer Übergangswahrscheinlichkeit noch Messungen außerhalb der inhomogenen Linie der Einquantenprozesse durchführen zu können.

Eine Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses des HF-Signals gegenüber den in dieser Arbeit beschriebenen Experimenten ist durch Vergrößerung der Schalleistung, höhere Dotierung und automatische Regelung der Impedanzanpassung des HF-Kreises zu erreichen. Die verwendete HF-Apparatur erlaubt, das Dispersionssignal zu messen, wobei wegen der Pulsform des Signals nicht auf eine Frequenzregelung verzichtet werden muß.

12 Anhang

12.1 Bestimmung kleiner Änderungen der Güte des Hochfrequenzkreises

Ist die Teilinduktivität der HF-Spule zwischen den Anschlußpunkten klein gegen die Gesamtinduktivität, so kann zur Beschreibung der HF-Eigenschaften des Kreises das in der Abbildung 12.1 angegebene Ersatzschaltbild verwendet werden.



ω	Kreisfrequenz
$L = L_A + L_B$	Induktivität der Spule
L_B	Teilinduktivität zwischen den Anschlußpunkten
C	Kapazität des HF-Kreises
R_1	Ohmscher Widerstand

Abb. 12.1 Ersatzschaltbild für den HF-Kreis

Die Induktivität der Spule wurde aus der Variation der Resonanzfrequenz mit der Kapazität von parallel geschalteten Kondensatoren ermittelt. Aus der Kreisfrequenz ω_K bei Resonanz des Kreises ergibt sich die Kapazität

$$C = \frac{1}{\omega_K^2 L} \quad (12.1)$$

und aus der Güte des Kreises bei schwacher Ankopplung der ohmsche Widerstand

$$R_1 = \frac{\omega_K L}{Q} \quad (12.2)$$

Bei komplexem Ansatz für Strom und Spannung besitzt der Kreis an den Anschlußpunkten die Impedanz

$$z = \frac{R_1 R_4^2 + j R_4 [R_1^2 + (R_2 + R_3) (R_2 + R_3 + R_4)]}{R_1^2 + (R_2 + R_3 + R_4)^2} \quad (12.3)$$

Die Spannung u_R der reflektierten Welle an den Anschlußpunkten ist

$$u_R = r u_H$$

mit

$$r = \frac{z - R_L}{z + R_L} \quad (12.4)$$

wobei u_H die Spannung der hinlaufenden Welle und R_L den Wellenwiderstand der als verlustfrei angenommenen Leitung bezeichnet. r wird Reflexionsfaktor genannt. Die Herleitung der Gleichung (12.4) kann Lehrbüchern der HF-Technik entnommen werden. In reeller Darstellung erhält man für die Spannung U_R der reflektierten Welle am Kreis

$$U_R = |r| U_{HO} \cos(\omega t + \varphi_K) \quad , \quad \varphi_K = \arctan \left(\frac{\operatorname{Im}(r)}{\operatorname{Re}(r)} \right) \quad (12.5)$$

wobei U_{HO} die Amplitude der hinlaufenden Welle und φ_K die Phasendifferenz zwischen den Spannungen der hinlaufenden und der rücklaufenden Welle ist.

Auf dem Wege zwischen Kreis und Mischer (s. Abb. 7.1) erfährt die reflektierte Welle eine Phasenverschiebung φ_L . Die multiplikative Mischung mit einer vom Sender kommenden Welle mit der Spannung $U_{VO} \cos(\omega t + \varphi_V)$ am Mischereingang ergibt für die Mischerausgangsspannung U die Beziehung

$$U \sim |r| U_{HO} \cos(\omega t + \varphi_L + \varphi_K) U_{VO} \cos(\omega t + \varphi_V)$$

$$U \sim |r| U_{HO} U_{VO} [\cos(\varphi_V - \varphi_L - \varphi_K) + \cos(2\omega t + \varphi_V + \varphi_L + \varphi_K)] \quad (12.6)$$

Der explizit zeitabhängige Term wird durch einen Tiefpaß eliminiert, und man erhält am Ausgang des Nachweissystems die Spannung

$$U_S = c |r| U_{HO} U_{VO} \cos(\varphi_V - \varphi_L - \varphi_K), \quad (12.7)$$

wobei c eine Proportionalitätskonstante ist.

Betrachten wir den Fall, daß die Anpassung des Kreises durch eine kleine Änderung der Güte ΔQ mit $|\Delta Q| \ll Q$ aufgehoben wird. Der relativen Güteänderung $\frac{\Delta Q}{Q}$ entspricht eine relative Änderung $\frac{\Delta R_1}{R_1} = -\frac{\Delta Q}{Q}$ des ohmschen Widerstandes R_1 im Ersatzschaltbild. Für $\Delta R_1 \ll R_1$ ist $|z - R_L| \ll R_L$ und es kann

$$r = \frac{z - R_L}{2R_L}$$

$$r = \frac{R_1 R_4^2 - R_L [R_1^2 + (R_2 + R_3 + R_4)^2] + j R_4 [R_1^2 + (R_2 + R_3) (R_2 + R_3 + R_4)]}{2R_L [R_1^2 + (R_2 + R_3 + R_4)^2]} \quad (12.8)$$

gesetzt werden. Aus $|r| \ll 1$ folgt

$$r = \frac{\partial r}{\partial R_1} (r=0) \Delta R_1.$$

und

$$r = \frac{R_4^2 - 2R_1 R_L + j 2 R_4 R_1}{2R_L [R_1^2 + (R_2 + R_3 + R_4)^2]} \Delta R_1 \quad (12.9)$$

Der Reflexionsfaktor r besitzt das gleiche Vorzeichen wie die Widerstandsänderung ΔR_1 . Ändert sich ΔR_1 von positiven zu negativen Werten, so springt beim Durchgang durch die Anpassung ($\Delta R_1 = 0$) die Phase φ_{KQ} der reflektierten Welle um π . Mit Hilfe der Gleichung (12.3) unter Berücksichtigung der Anpassung folgt

$$|r| = \frac{|\Delta R_1|}{R_1} \quad (12.10)$$

und mit Gleichung (12.7) für die Ausgangsspannung des Spektrometers

$$U_S(Q) = c U_{Ho} U_{Vo} \cos(\varphi_V - \varphi_L - |\varphi_{KQ}|) \frac{\Delta Q}{Q} \quad (12.11)$$

Für die Phasenverschiebung φ_{KQ} zwischen einlaufender und reflektierter Welle bei Güteänderungen ergibt sich aus Gleichung (12.9) mit Gleichung (12.3)

$$\cotg \varphi_{KQ} = \frac{R_4}{2R_1} - \frac{R_1}{2R_4} \quad (12.12)$$

Mit dem Ansatz

$$R_2 + R_3 = 2\omega L_A \frac{\omega - \omega_K}{\omega_K} \quad (12.13)$$

läßt sich analog zur Rechnung für Güteänderungen zeigen, daß für kleine Abweichungen der Frequenz des Senders von der Anpaßfrequenz $\omega_A/2\pi$ die Beziehungen

$$U_S(\omega) \approx (\omega - \omega_A) \cos(\varphi_V - \varphi_L - |\varphi_{Kw}|) \quad (12.14)$$

und

$$\operatorname{tg} \varphi_{Kw} = \frac{R_4}{2R_1} - \frac{R_1}{2R_4} \quad (12.15)$$

gelten.

Die Phase des Reflexionsfaktors bei Frequenzänderung φ_K ist, wie ein Vergleich zwischen den Gleichungen (12.12) und (12.15) zeigt, um $\pi/2$ gegenüber der bei Güteänderungen verschoben. Stellt man die Phase φ_V auf minimale Frequenzabhängigkeit der Ausgangsspannung $U_S(\omega)$ bei Anpassung ein, so ist nach Gleichung (12.14) $\cos(\varphi_V - \varphi_L - |\varphi_{Kw}|) = 0$, und es folgt mit $\varphi_{Kw} = (\varphi_{KQ} - \frac{\pi}{2})$ aus Gleichung (12.11)

$$U_S = c U_{Ho} U_{Vo} \frac{\Delta Q}{2Q} \quad (12.16)$$

Diese Gleichung dient zur Berechnung der Güteänderung des Kreises. Der Faktor c wird durch Ersetzen des Kreises durch ein Bauteil mit bekanntem Reflexionskoeffizienten bestimmt.

Die Phase φ_V der Vergleichsspannung am Eingang des Mischers II ist gegenüber der am Mischer I um $\frac{\pi}{2}$ phasenverschoben. Die Ausgangsspannung des Mischers I ist daher proportional zu

$$(\omega - \omega_A) \cos(\varphi_V - \varphi_L - |\varphi_{Kw}| + \frac{\pi}{2}) = \omega - \omega_A$$

und wird zur Nachregelung der Frequenz des Senders auf die Anpaßfrequenz verwendet.

12.2 Frequenzabhängigkeit der Reflexion des Hochfrequenzkreises

Die Abhängigkeit des Betrages des Reflexionsfaktors $|r|$ und der Größen $|r|\cos[\varphi_K(\nu_A) - \varphi_K(\nu)]$ und $|r|\cos[\varphi_K(\nu_A) - \varphi_K(\nu) - \frac{\pi}{2}] = |r|\sin[\varphi_K(\nu_A) - \varphi(\nu)]$ von der Frequenz $\nu = \omega/2\pi$ zeigen die Abbildungen 12.2 und 12.3. ν_A ist die Frequenz, bei der der Betrag des Reflexionsfaktors sein Minimum annimmt, und $\varphi_K(\nu_A)$ die Phase des Reflexionsfaktors. Die Darstellung in Abb. 12.2 gilt für eine Teilinduktivität L_B zwischen den Anschlußpunkten der Spule, für die bei der Frequenz $\nu_A = 183 \text{ MHz}$ Anpassung erzielt wird. Die der Abb. 12.3 entsprechende Teilinduktivität ist etwa um 30 % kleiner. Die Kurven sind für Kreisgüten von 130 und 143 berechnet, die Punkte mit einem HF-Kreis der Güte 130 mit gleichem Spulenabgriff für beide Abbildungen gemessen. Die Anpassung wurde durch Impedanztransformation mit Hilfe von Kurzschlußleitung und Posaune erreicht.

Die Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messung bestätigt die Brauchbarkeit des in Abb. 12.1 angegebenen Ersatzschaltbildes zur Beschreibung des HF-Verhaltens des HF-Kreises. Sie zeigt außerdem, daß sich durch Beobachtung der Frequenzabhängigkeit der Reflexion Güteänderungen des Kreises beim Abkühlen auf Heliumtemperaturen relativ einfach verfolgen lassen, obwohl die Länge der Leitungen im Experiment aus technischen Gründen (Deward) nicht klein gegen die Wellenlänge sein kann.

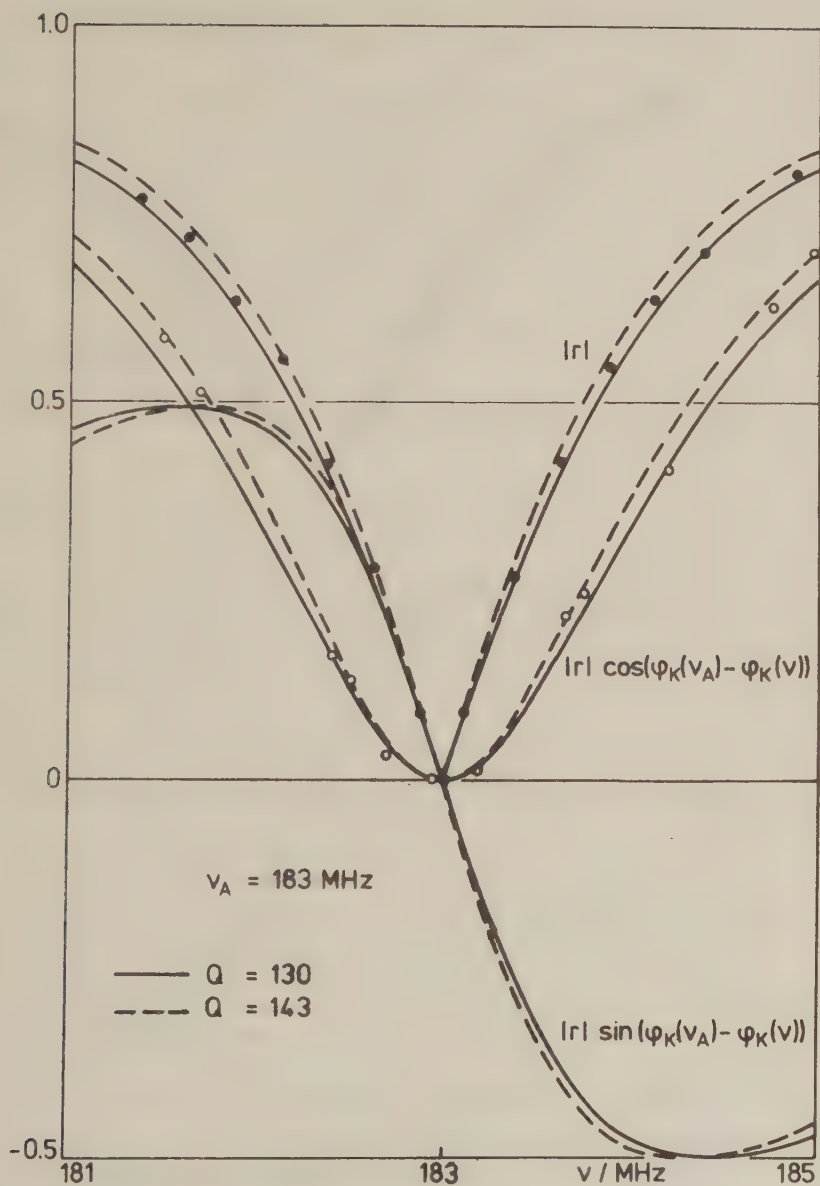


Abb. 12.2 Frequenzabhängigkeit der Reflexion des HF-Kreises mit Anpassung bei 183 MHz

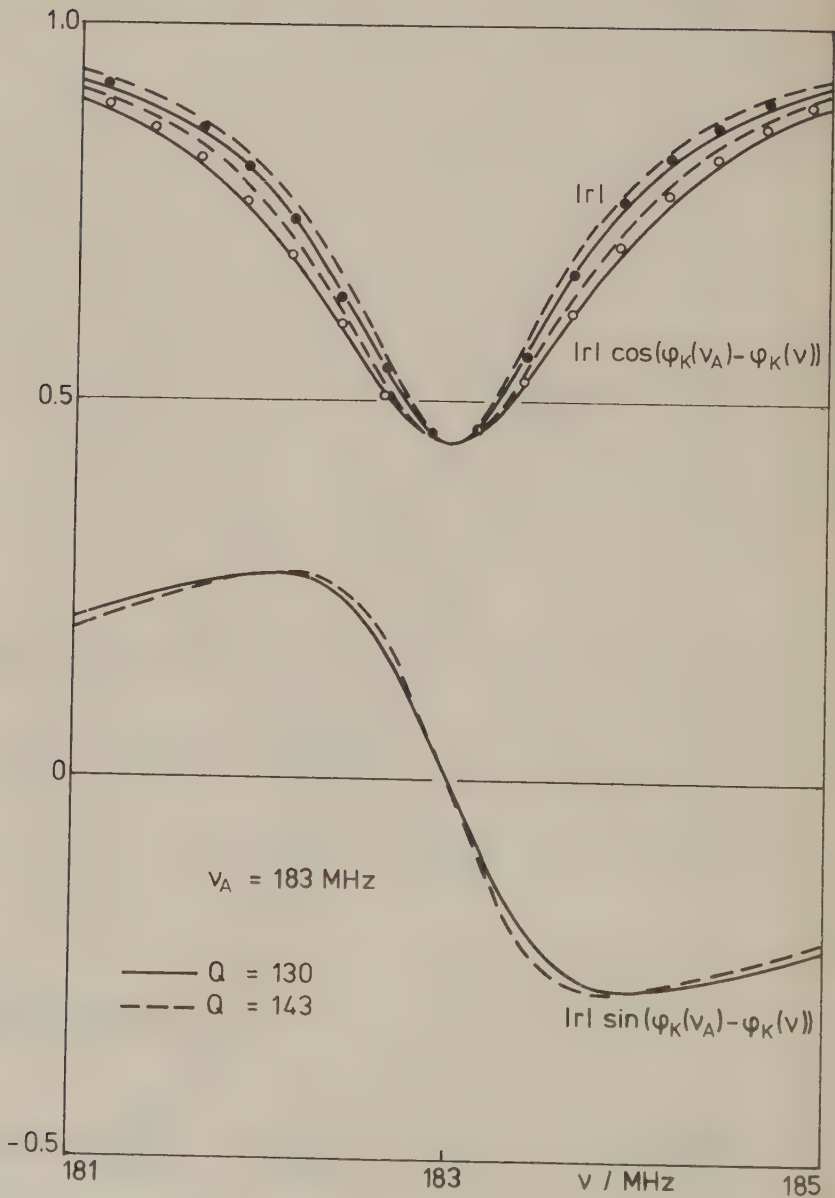


Abb. 12.3 Frequenzabhängigkeit der Reflexion des HF-Kreises ohne Anpassung

13 Literaturverzeichnis

- 1) E. H. Jacobsen, in Quantum Electronics I, ed. by C. H. Townes, 468, Columbia Univ. Press (1960)
- 2) R. Truett, W. Oates, J. Acoust. Soc. Am. 35, 1382 (1963)
- 3) V. W. Rampton, P. M. Rowell, J. Phys. Chem. Solids 28, 395 (1967)
- 4) R. G. F. Taylor, A. J. Pointon, Contemp. Phys. 10, 159 (1969)
- 5) E. M. Ganapol'skii, Bull. Ac. Sc. USSR Phys. Ser. 35, 883 (1971)
- 6) E. H. Jacobsen, N. S. Shiren, E. B. Tucker, Phys. Rev. Let. 3, 81 (1959)
- 7) M. F. Lewis, A. M. Stoneham, Phys. Rev. 164, 271 (1967)
- 8) J. M. Andrews, M. W. P. Strandberg, J. Appl. Phys. 38, 2660 (1967)
- 9) N. S. Shiren, Phys. Rev. Let. 6, 168 (1961)
- 10) E. B. Tucker, Proc. IEEE 53, 1566 (1965)
- 11) N. S. Shiren, Appl. Phys. Let. 7, 142 (1965)
- 12) N. S. Shiren in Physics of Quantum Electronics, ed. by P. L. Kelley, B. Lax, P. F. Tannenwald, 385, Mc Graw-Hill Book Comp. (1966)
- 13) N. S. Shiren, Phys. Rev. Let. 17, 958 (1966)
- 14) P. H. Carr, A. J. Budreau, Phys. Rev. Let. 21, 976 (1968)
- 15) P. H. Carr, A. J. Budreau, IEEE Transactions on Sonics and Ultrasonics M-4, 36 (1969)
- 16) A. J. Budreau, P. H. Carr, J. Phys. Chem. Sol. 31, 1709 (1970)

- 17) J. W. Tucker, V. W. Rampton, Microwave ultrasonics in Solid State Physics, 206, North-Hol. Publ. Comp. (1972)
- 18) D. H. McMahon, Phys. Rev. 134, A 128 (1964)
- 19) W. I. Dobrov, Phys. Rev. 134, A 734 (1964)
- 20) H. Steinbacher, Diplomarbeit, TH Karlsruhe (1964)
- 21) J. W. Tucker, V. W. Rampton, Microwave ultrasonics in Solid State Physics, 224, North-Hol. Publ. Comp. (1972)
- 22) R. Boese, Staatsexamensarbeit, FU Berlin (1975)
- 23) W. Kern, Dissertation, FU Berlin (1974)
- 24) N. S. Shiren, Phys. Rev. Let. 11, 3 (1963)
- 25) P. H. Carr, IEEE Transactions on Sonics and Ultrasonics SU-13, 103 (1966)
- 26) D. R. Taylor, I. G. Bartlet, Phys. Rev. Let. 30, 96 (1973)
- 27) K. J. Stanley, R. A. Vaughan, Electron Spin Relaxation Phenomena in Solids, Chapter 7, Adam Hilger Ltd., (1969)
- 28) M. F. Lewis, Phys. Let. 19, 459 (1965)
- 29) G. D. Watkins, E. R. Feher, Bull. Am. Phys. Soc. ser. II 7, 29 (1962)
- 30) N. S. Shiren, Bull. Am. Phys. Soc. ser. II 7, 29 (1962)
- 31) J. C. M. Henning, J. H. den Boef, Phys. stat. sol. (b) 72, 369 (1975)
- 32) R. J. Guerneur, A. Joffrin, A. Levelut, J. Penné, C. R. Acad. Sci. (Paris) 261, 5412 (1965)
- 33) W. Low, M. Weger, Phys. Rev. 118, 1119 (1960)
- 34) A. J. Freeman, R. E. Watson, Magnetism II A, 167, Academic Press (1965)

- 35) N. S. Shiren, T. G. Kazyaka, Phys. Rev. Let. 28, 1304
(1972)

Zusammenfassung

Die simultane Wechselwirkung eines Schallfeldes (Frequenz 9,05 GHz) und eines magnetischen Wechselfeldes (183 MHz) mit paramagnetischen Fe^{2+} -Ionen in MgO-Kristallen wurde durch Messen der Absorption sowohl von Schall- wie auch von elektromagnetischer Energie bei $|\Delta M| = 2$ -Übergängen zwischen Zeemanniveaus in Abhängigkeit von verschiedenen Parametern untersucht. Die Wahrscheinlichkeit der Phonon-Photon-Übergänge ist unabhängig von der Lage eines dritten Teilchenniveaus. Prozesse dieser Art sind daher immer möglich, wenn Einquantenübergänge zu beobachten sind. Experimente, bei denen das Ausnutzen der simultanen Wechselwirkung Vorteile bringen kann, werden genannt. In der vorliegenden Arbeit ermöglichte die simultane Wechselwirkung, die Bestimmung der Energie des Schallimpulses zu verbessern und die in einigen Messungen störende große Wahrscheinlichkeit von APR-Übergängen der Fe^{2+} -Ionen für die bei APR-Spektrometern üblichen Schallintensitäten herabzusetzen. Es wurde so u.a. der Betrag der Spin-Phonon-Kopplungskonstanten G_{11} zu $580 \text{ cm}^{-1} \pm 30 \%$ bestimmt und die zeitliche Entwicklung der Besetzungsdifferenz nach einem Sättigungsimpuls untersucht. Das beobachtete Verhalten unterschied sich von dem, das bei reiner Spin-Gitter-Relaxation zu erwarten wäre.

Die vorliegende Arbeit wurde am Institut für Atom- und Festkörperphysik der Freien Universität Berlin durchgeführt. Ich danke allen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, insbesondere

Herrn S. Wilking für die tatkräftige Betreuung
meinen Kollegen W. Kern, R. Martens, V. Müller
für fruchtbare Diskussionen und darüber hinaus-
gehende Hilfen

Herrn D. Majercyk für seine Mitarbeit beim Auf-
dampfen der piezoelektrischen Schichten

Frau A. Rudolph und Frau A. Schulze für ihre
Unterstützung bei den Messungen und Auswertun-
gen.

L e b e n s l a u f

Am 25.9.1939 wurde ich als Sohn des Versicherungsmathematikers Erwin Christmann und seiner Ehefrau Maria, geborene Hofstadt, in Berlin geboren. Nach Ablegen der "Reifeprüfung für Nichtschüler" im Frühjahr 1968 nahm ich an einem Hochschulpraktikum bei der Firma Siemens & Halske teil. Im WS 58/59 begann ich mein Studium der Physik an der Freien Universität in Berlin und bestand dort im Juli 1966 die Diplom-Hauptprüfung. Die Diplomarbeit fertigte ich am 1. Physikalisches Institut bei Herrn Prof. Dr. H. Lassen an. Sie behandelt die quantitative Bestimmung von γ -Strahlintensitäten.

Vom November 1966 bis Oktober 1968 war ich mit der Wahrnehmung der Dienstgeschäfte eines Wissenschaftlichen Assistenten an der Freien Universität Berlin beauftragt und vom November 1968 bis März 1977 als Wissenschaftlicher Assistent tätig.

Als Doktorand gehöre ich dem Institut für Atom- und Festkörperphysik an.

